



Caractérisation des sources radioactives du cycle du combustible. Applications au cycle du thorium : synthèse de l' ^{232}U en combustibles solides

Baptiste Leniau

► To cite this version:

Baptiste Leniau. Caractérisation des sources radioactives du cycle du combustible. Applications au cycle du thorium : synthèse de l' ^{232}U en combustibles solides. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2013. Français. NNT : 2013PA112227 . tel-00907058

HAL Id: tel-00907058

<https://theses.hal.science/tel-00907058>

Submitted on 20 Nov 2013

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École Doctorale Modélisation et Instrumentation en Physique, Énergies,
Géosciences et Environnement

Institut de Physique Nucléaire d'Orsay

Discipline : Physique

THÈSE

présentée par : **Baptiste LENIAU**

soutenue le : **09 octobre 2013**

pour obtenir le grade de : **Docteur ès sciences de l'Université Paris Sud**

Caractérisation des sources radioactives du cycle du combustible

Applications au cycle du thorium

Synthèse de l' ^{232}U en combustibles solides

Composition du Jury :

Président du Jury :	M. DESESQUELLES Pierre	<i>Professeur, Université Paris Sud</i>
Rapporteurs :	M. RIMPAULT G�rald M. A�T ABDERRAHIM Hamid	<i>Professeur, CEA-Cadarache Professeur, UCL-Louvain-la-neuve, SCK-CEN-Mol, Belgique</i>
Examineurs :	M. BLUMENFELD Yorick M. FALLOT Muriel	<i>DR, CNRS/IPN-Orsay Enseignant-Chercheur, Subatech-Nantes</i>
Directeur de th�se :	M. WILSON N. Jonathan	<i>CR, CNRS/IPN-Orsay</i>

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord Faïçal Azaiez, directeur de l'institut de physique nucléaire d'Orsay pour m'avoir accueilli dans ce laboratoire. J'exprime ma gratitude à Jonathan Wilson, mon directeur de thèse, pour sa confiance et son soutien dans mon travail ainsi que pour m'avoir initié au monde de l'expérimentale au Tandem d'Orsay et à Olso. J'exprime mes plus vifs remerciements à Gérard Rimpault et à Hamid Aït Abderrahim, qui m'ont fait l'honneur d'être les rapporteurs de ma thèse, pour leur important travail de relecture et leurs commentaires. Mes remerciements vont également aux autres membres du Jury : Yorick Blumenfeld, Muriel Fallot et Pierre Desesquelles. Je tiens à remercier Muriel pour l'intérêt qu'elle a porté à mes développements sur les calculs de termes sources, de son aide sur la validation du calcul de spectre β^- et des différentes corrections apportées à ce manuscrit. Merci aussi aux autres nantais : Nico et BaM pour m'avoir convié aux différentes réunions et formations sur le très prometteur code de scénario CLASS et à Lydie et Antony pour l'intérêt qu'ils ont porté à CHARS. Très cher PACS, je te remercie pour ton accueil, ta bonne humeur et ton soutien tout au long de ma thèse, merci Loulou d'avoir supporté mes sursauts d'énervements (ah le C++...), merci pour tous ces (\pm) délicieux mets et autres cadeaux ramenés de pays (\pm) lointains ; merci à Marc pour ses nombreux conseils, pour m'avoir accompagné au coin fumeur même par mauvais temps, pour les T-shirt CHARS et la préparation du pot de thèse ; merci à Sylvain pour son aide et son réconfort notamment lors de la préparation de la soutenance ; merci Charles-Olivier pour ton enthousiasme envers CHARS, je suis fier de te compter parmi les utilisateurs ; Xavier je t'exprime ma profonde gratitude pour ton aide précieuse et ta disponibilité tout au long de la thèse et particulièrement dans la difficile dernière ligne droite, merci également pour ton aide sur les inventaires adjoints, merci LTG pour toutes ces conversations de physique et autres, merci notamment pour tes explications sur la décroissance β ; merci aux autres membres du groupe PACS : Mathieu, LoA, Chloé et Pierre. Merci aux grenoblois et particulièrement à Olivier pour son aide sur la prise en compte de la synthèse d'isomères par réactions nucléaires, à Adrien pour sa commande spéciale sur les dpa dans les colis, à Nico* et Alexis pour leurs géométries REB et CANDU. Je tiens à gratifier toute l'équipe du C.S., pour toutes ces épiques sessions de *team building* et plus particulièrement tout ceux (la plupart) qui ont eu le bon goût de *tomber sous mes balles*. Ainsi, je remercie en premier lieu *ten Tesla* qui, le pauvre, a fait ce qu'il a pu, malgré son affinité avec le plomb. Comment oublier ce délicieux *Sheldav* perché sur SON toit ou encore *ZaZa1^{er}* toujours à l'affut derrière une caisse ou autre trou de murène. Merci à *WinnieLourson* (véritable pierre à aiguiser), *BlindShooter* (fournisseur de desert eagle), Ouida (mieux ne vaut pas le croiser) et *CroMignon* (*free kill*). J'espère que la tradition du C.S. du groupe PACS perdurera encore longtemps et que l'équipe me trouvera un digne successeur.

Merci à toute ma famille, à mes amis, et à la belle mignonne pour leurs soutiens inconditionnels.

Résumé

Si le cycle du thorium possède plusieurs avantages par rapport au cycle U/Pu, notamment une meilleure régénération de la matière fissile en spectre thermique et une production moindre d'actinides mineurs, il présente plusieurs limites. L'une d'elles est la présence, dans le combustible thorié irradié, d' ^{232}U . Cet isotope est le précurseur d'un rayonnement γ de 2.6 MeV. Cette thèse a, en partie, pour objectif d'étudier les différents paramètres influençant la synthèse de ce noyau dans divers types de combustibles et de réacteurs. L'autre partie de ce travail consiste à estimer l'impact de cet indésirable sur la radioprotection de l'aval du cycle. Dans ce but, un ensemble d'outils, permettant le calcul des spectres énergétiques des différents rayonnements émis par la matière radioactive, a été spécialement développé. Cet outil, dont l'exactitude a été éprouvée par l'intermédiaire de plusieurs benchmarks, fait partie intégrante de ce travail de thèse.

Mots clés : Thorium, ^{232}U , Combustible utilisé, Spectres γ α β^- neutron, Réaction (α, n) , Château de transport, Fabrication du combustible, Débit de dose, Chaleur résiduelle, Rapport de branchement isomérique, Sensibilité, Inventaire adjoint, MCNP, MURE, CHARS

Abstract

In order to save the fissionable natural resources, the use of the thorium cycle is a good candidate for replacing the current U/Pu cycle since the fissile nucleus of the cycle, ^{233}U , has neutronic properties favorable to a much better regeneration of fissile material in thermal reactors. Moreover, as the nuclei of the thorium cycle are lighter than in the U/Pu cycle, the production of minor actinides is significantly reduced and hence waste inventories could be much lower. However, the use of Thorium is only viable if the spent fuel is reprocessed to recover the fissile ^{233}U which does not exist in nature. This reprocessing will involve a heavy industrial infrastructure, particularly since thorium based spent fuel contains small quantities of ^{232}U which is the mother of the hard gamma emitter (^{208}Tl) of 2.6 MeV. The goal of this thesis is, firstly, to study the parameters related to the synthesis of the ^{232}U in several kind of fuels and reactors. In a second part, the thesis focuses on the impact on radioprotection of the back end of the fuel in case of switching from the current uranium (U/Pu) cycle to the thorium (Th/U) cycle. For this last purpose, CHARS (CHAracterization of Radioactives Sources) was developed during this thesis. This code, validated by several benchmarks, handles the calculation of radiation sources (alpha, beta, gamma and neutron) in all aspects of the fuel cycle (transport, reprocessing, fuel fabrication, etc.).

Keywords : Thorium, ^{232}U , Spent fuel, α spectrum, β^- spectrum, γ spectrum, neutron spectrum, (α, n) reactions, Spent fuel transportation cask, Dose rate, Decay heat, Isomeric branching ratio, Sensibility, Adjoint inventory, MCNP, MURE, CHARS

Table des matières

Introduction	1
1 Contexte	5
1.1 Généralités sur le cycle du thorium : Avantages et limites	5
1.1.1 Régénération du fissile en spectre thermique	6
1.1.2 Initier le cycle	8
1.1.3 Production de déchets	8
1.1.4 Problématique de l'uranium 232	11
1.1.5 Autres aspects du cycle Th/U	14
1.2 Le Cycle du combustible	18
1.2.1 Amont du cycle	19
1.2.2 Aval du cycle	20
1.3 Codes de calcul	24
1.4 Outils de l'étude : codes MURE et MCNP	24
1.4.1 MCNP	24
1.4.2 MURE	26
I Synthèse de l'Uranium 232 dans les systèmes nucléaires	31
2 Introduction	33
2.1 Méthodologie générale et cadre de l'étude	33

TABLE DES MATIÈRES

2.1.1	Calcul de la teneur initiale en noyaux fissiles	34
2.1.2	Données nucléaires	36
2.1.3	Systèmes étudiés	37
2.2	Voies de production de l' ^{232}U	45
2.2.1	Synthèse du ^{236}Pu	48
2.2.2	Destruction du $^{236}\text{Np}^m$	49
2.3	Solution adjointe des équations de Bateman	50
2.4	Détermination du nombre de noyaux produits par une voie de réaction	51
3	Synthèse de l'uranium 232 en REP	53
3.1	Combustible UO_2	54
3.1.1	Influence de la teneur en noyaux fissiles	54
3.1.2	Inventaires au cours du refroidissement	60
3.1.3	Influence du temps séparation-irradiation	61
3.1.4	Uranium de Retraitement	65
3.1.5	Résumé des résultats	68
3.1.6	Sensibilités aux données nucléaires	68
3.1.7	Conclusion	73
3.2	Combustible MOX	74
3.2.1	Influence du temps séparation-irradiation	77
3.2.2	Conclusion	78
3.3	Combustible ThU	78
3.3.1	Impact de la teneur en uranium	80
3.3.2	Impact du minerai de thorium utilisé	82
3.3.3	Résumé des résultats	83
3.3.4	Sensibilités aux données nucléaires	84
3.3.5	Conclusion	86
3.4	Combustible ThPu	87
3.4.1	Impact de la qualité du Plutonium	88

TABLE DES MATIÈRES

3.4.2	Impact du Thorium utilisé	92
3.4.3	Résumé des résultats	93
3.4.4	Conclusion	94
3.5	Conclusion générale sur la production d' ^{232}U en REP	94
4	Comparaison inter-filières	97
4.1	Combustible ThU	97
4.1.1	Inventaires à l'équilibre	98
4.1.2	Inventaires au premier cycle	101
4.2	Combustible ThPu	104
4.2.1	Inventaires à l'équilibre	105
4.2.2	Inventaires au premier cycle, comparaisons au ThU	107
4.3	Conclusion	107
II	partie 2 : Impact du Thorium sur le cycle électro-nucléaire	113
5	Calcul des termes sources	115
5.1	Données de structures nucléaires	115
5.2	Spectres gamma	117
5.2.1	gammas primaires	117
5.2.2	Photons secondaires induits par les β^-	118
5.2.3	Part du Bremsstrahlung des β^- dans le spectre γ d'un combustible usé	127
5.3	Validations γ	131
5.3.1	Mineral de Thorium	131
5.3.2	Benchmark avec CESAR	136
5.4	Spectres de neutrons	145
5.4.1	Fission spontanée	145
5.4.2	Réactions (α ,n)	146

TABLE DES MATIÈRES

5.5	Validation Neutron	154
5.5.1	Benchmark SOURCES-4C	154
5.6	Intégration dans MURE : le module CHARS	157
5.6.1	Intégration dans l'interface graphique MureGui	158
6	Applications au cycle du thorium	165
6.1	Transport du combustible utilisé	165
6.1.1	Chaleur Résiduelle	166
6.1.2	Débit de Dose	170
6.1.3	Conclusion	178
6.2	Thorium de retraitement	178
6.3	Usine de fabrication du combustible	180
6.3.1	Description du poste de broyage primaire	181
6.3.2	Définition du cas de référence	182
6.3.3	Temps séparation-fabrication	184
6.3.4	Blindage γ supplémentaire	186
	Conclusion	191
	Bibliographie	196
	Annexes	205
A	Données nucléaires relatives au calcul des neutrons de fissions spontanées	205
B	Définition d'une source dans MURE à l'aide de CHARS	207
C	Proportions de réactions (α, n) sur le noyau i amenant sur le niveau l du noyau produit	209

Liste des tableaux

1.1	Proportion de précurseurs du fissile qui survivent à la capture	15
2.1	Caractéristiques de l'assemblage CANDU-6 [Gui09]	40
2.2	Caractéristiques de l'assemblage REP-N4	42
2.3	Caractéristiques d'un assemblage RNR-Na	44
2.4	Températures et densités des constituants de l'assemblage RNR-Na .	44
3.1	Isotopies des vecteurs Uranium et taux de combustion maximum at- teignable	55
3.2	Production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ (mg/tMLi) en REP UOx	55
3.3	Production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ en $\text{mg}/(\text{GW.e.an})$ au taux de combustion maximum respectif	56
3.4	Proportion d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ (en ppb) dans le vecteur uranium au taux de combustion maximum respectif	56
3.5	Part des différentes voies dans la production de l' ^{232}U et du ^{236}Pu . $3\% ^{235}\text{U}$, $36\text{GWj}/\text{tMLi}$	57
3.6	Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur le taux de réaction $N_{235\text{U}}(n, \gamma)$	57
3.7	Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur le taux de réaction $N_{237\text{Np}}(n, 2n)$	58
3.8	Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur les taux de réactions $^{230}\text{Th}(n, \gamma)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	60
3.9	Variation de l'inventaire en ^{232}U et en ^{236}Pu avec l'enrichissement pour chaque voie (en mg/tMLi) à $36\text{GWj}/\text{tMLi}$	60

LISTE DES TABLEAUX

3.10	Part du ^{230}Th et ^{231}Pa dans de l' UO_2	62
3.11	Valeurs des N^+ à $t = 0$ du ^{231}Pa et du ^{230}Th associées à la production d' ^{232}U	63
3.12	Quantités d' ^{232}U (mg/tMLi) produites en fonction de T (calculées par N^+)	64
3.13	Vecteur isotopique de l'URTe et de l'Unat enrichi en début de cycle .	66
3.14	Quantité d' ^{232}U et de ^{236}Pu à la fin de l'irradiation pour de l'URTe et de l'Unat enrichi à $40 \text{ GWj}/\text{tMLi}$	66
3.15	Proportion d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ dans le vecteur uranium et production d' ^{232}U par unité d'énergie électrique produite	67
3.16	Sensibilités de la production de l' ^{232}U et du ^{236}Pu aux données nucléaires à la fin de l'irradiation ($55\text{GWj}/\text{tMLi}$).	69
3.17	Écarts entre les bases JEFF 3.1 et ENDF 7.1 sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu	72
3.18	Écarts entre les bases JEFF 3.1 et ENDF 7.1 sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu . Détails par voies	73
3.19	Composition isotopique du combustible MOX	75
3.20	Production d' ^{232}U et de ^{236}Pu par les différents noyaux présents initialement ($\mu\text{g}/\text{tMLi}$)	76
3.21	Production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ par unité d'énergie électrique et proportion dans le vecteur uranium à la fin de l'irradiation ($55\text{GWj}/\text{tMLi}$) . . .	77
3.22	Production d' ^{232}U en fonction de la teneur en ^{233}U à $42\text{GWj}/\text{tMLi}$.	80
3.23	Écarts entre les simulations (3 % et 4 % d' ^{233}U) sur le taux de réaction $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	81
3.24	Production d' ^{232}U en fonction de la teneur en ^{233}U à leurs taux de combustion maximum	82
3.25	Sensibilités de la production d' ^{232}U aux sections efficaces : combustible ThU	85
3.26	Production d' ^{232}U par les différentes voies ($55\text{GWj}/\text{tMLi}$)	88
3.27	Production d' ^{232}U ($55\text{GWj}/\text{tMLi}$) pour différentes normalisations. Comparaison avec le ThU	88

LISTE DES TABLEAUX

3.28	Composition isotopique du combustible MOX	89
3.29	Production d' ^{232}U (55GWj/tMLi)	90
3.30	Écarts entre les simulations (Bon et Mauvais plutonium) sur les taux de réaction $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	92
3.31	Comparaisons des $N_{230\text{Th}}^+$ ($t=55\text{GWj/tMLi}$)	92
3.32	Production d' ^{232}U selon le minerai de thorium	93
3.33	Tableau de conclusion sur la synthèse en REP	94
4.1	Inventaires à l'équilibre	99
4.2	100
4.3	Production d' ^{232}U selon la technologie de réacteur $t=t_{\text{max}}$	101
4.4	Composition du vecteur uranium à l'issu de l'irradiation	104
4.5	Sections efficaces relatives à la production d' ^{232}U	105
4.6	Inventaires à l'équilibre	105
4.7	Production d' ^{232}U selon la technologie de réacteur 1 ^{er} cycle	107
5.1	Part du rayonnement de freinage issu des β^- dans le combustible utilisé	129
5.2	Données d'entrée du benchmark	137
5.3	Moyennes et écarts types des valeurs de rapport de spectres MURE/- CESAR pour différents jeux de données utilisées par MURE	141
5.4	Intensités calculées par CESAR et par MURE(JEFF3.1.1 & ENSDF) . 100 ans de refroidissement	144
5.5	Comparaison des isomères émetteurs γ produits par (n, γ) calculés par CESAR et par MURE à 3 mois après déchargement	145
5.6	Liste des niveaux du noyau produit pris en compte dans CHARS et énergies seuils des α amenant à ces niveaux	152
5.7	Compositions isotopiques(% massique) des échantillons de PuO_2 . . .	154
5.8	Total des neutrons issus de la mesure et du calcul	155
5.9	Comparaison SOURCES CHARS du total des neutrons émis par les échantillons "combustibles REP"	155
6.1	Composition du vecteur plutonium	183

LISTE DES TABLEAUX

6.2	Vecteur Isotopique de l'uranium appauvri	184
6.3	Comparaison des doses entre le cas de référence et la poudre $(Th, U)O_2$	186
A.1	Donnés pour le calcul des neutrons de fissions spontanées. * Donnés prises de la référence [Sho01]	206

Table des figures

1.1	Nombre de neutrons disponibles pour la surgénération [Bri10]	7
1.2	Extrait de la table des noyaux	9
1.3	Radiotoxicité comparée des déchets issus du cycle U/Pu et Th/U. <i>Courbe reproduite avec l'aimable autorisation de Julie Brizi [Bri10].</i> . .	10
1.4	<i>Gauche</i> : Chemin de décroissance de l' ^{232}U . <i>Droite</i> : Spectre γ pour un noyau d' ^{232}U ayant décréut pendant 10.2 ans.	12
1.5	Dose à 30 cm de 5 kg d' ^{233}U contenant de l' ^{232}U	13
1.6	Principe itératif du calcul d'évolution MURE	29
2.1	k_{∞}^{coeur} , k_{∞} , et k_{seuil} d'un REP UOx (4.1% mol. d' ^{235}U). Taux de combustion* maximum : 55GWj/tMLi	35
2.2	39
2.3	Coupe radial de l'assemblage CANDU simulé	40
2.4	Coupe radial de l'assemblage REP simulé	42
2.5	Coupe radiale de l'assemblage RNR-Na simulé	44
2.6	Proportion de ^{230}Th et de ^{231}Pa dans l'uranium naturel au cours du temps après séparation chimique	47
2.7	Influence de la réaction $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}^m$ sur la production d'ura- nium 232 en REP UOx.	49
3.1	Inventaires de ^{237}Np au cours de l'irradiation	59
3.2	Inventaires en ^{232}U ($\text{g}/(\text{GW.e.an})$) au cours du refroidissement	61
3.3	Variation des $N^+(0, t_f)$ en fonction du taux de combustion final (t_f) pour un enrichissement initial de 4.3 %	64

TABLE DES FIGURES

3.4	Production d' ^{232}U dans un combustible URTe selon chaque voie . . .	67
3.5	sections efficaces	71
3.6	$^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	72
3.7	Production d' ^{232}U (+ ^{232}Pa) en REP ThU. Détails par voies.	79
3.8	Spectres neutronique	81
3.9	Augmentation de la production d' ^{232}U en fonction du rapport $\frac{U}{Th}$ du minerai de thorium	83
3.10	Section efficace $^{232}\text{Th}(n, 2n)$	85
3.11	Sections efficaces des noyaux présents dans le combustible à t=0 (ré- gion thermique)	91
3.12	Spectres neutroniques des différents plutonium utilisés (au début de l'irradiation)	91
4.1	Parties thermiques des spectres du REP et du CANDU superposés à $\sigma^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	101
4.2	Inventaires d' ^{232}U au cours de l'irradiation	102
4.3	Rapports des taux de réactions $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ sur $^{232}\text{U}(n, \text{abs})$ pour les trois systèmes	103
4.4	Spectre neutronique du REP et du CANDU superposé à la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	106
5.1	Proportion de l'énergie cinétique initiale des électrons, convertie en bremsstrahlung	119
5.2	Comparaison de spectres β^- calculés par Subatech et par CHARS pour une décroissance	127
5.3	<i>Gauche</i> : Activité β^- des combustibles usés. <i>Droite</i> : Rapport de la somme des activités β^- des émetteurs les plus énergétiques sur l'activité totale.	130
5.4	Spectre du flux γ d'un combustible ThU à 1 an après déchargement .	131
5.5	Spectre gamma mesuré de minerai de thorium	132
5.6	Comparaison calcul/mesure	134
5.7	Rapport spectre mesuré / spectre calculé	135

TABLE DES FIGURES

5.8	Histogramme d'occurrences	136
5.9	Comparaison des spectres γ calculés par MURE/CHARS et par CESAR	139
5.10	Rapport des spectres : MURE(ENDF,ENSDF)/CESAR	140
5.11	Rapport des spectres : MURE(JEFF3.1.1,ENSDF)/CESAR	141
5.12	Rapport des spectres du ^{106}Rh calculé avec ENSDF sur DDEP	142
5.13	Rapport des spectres : MURE(JEFF3.1.1,ENSDF & DDEP(Rh106))/CESAR	142
5.14	Schéma de la réaction (α, n)	147
5.15	Énergie minimum et maximum du neutron en fonction de l'énergie de l' α	149
5.16	Section efficace de la réaction $^{18}O(\alpha, n)^{21}Ne$	150
5.17	Spectres α au cours du temps d'un combustible utilisé ThU (haut) et UOx (bas)	153
5.18	Spectres neutrons ($n.s^{-1}g_{oxyde}^{-1}$) calculés par CHARS et SOURCES pour différents échantillons	156
5.19	Logo de CHARS	157
5.20	CHARS dans MURE	158
5.21	L'onglet Radio-toxicité de MureGui	159
5.22	Spectres β^- au cours du temps d'un combustible utilisé UOx (haut) et spectre gamma de l'uranium 232 et de ses descendants (bas)	160
5.23	Activité alpha d'un combustible utilisé au cours du temps	161
5.24	Principaux émetteurs gamma d'un combustible UOx (droite) et ThU (gauche)	162
6.1	Comparaison des chaleurs résiduelles des quatre combustibles irradiés	167
6.2	Principaux contributeurs à la chaleur résiduelle	169
6.3	Principaux contributeurs à la chaleur résiduelle du combustible $(Th, Pu)O_2$ irradié	170
6.4	Éclaté de l'emballage TN12/2	171
6.5	Géométrie simulée avec MCNP	173
6.6	Débits de doses à la surface du château	175

TABLE DES FIGURES

6.7	Principaux contributeurs à l'activité neutron d'un combustible $(Th, Pu)O_2$ irradié	176
6.8	177
6.9	Débit de dose : Thorium de Retraitement VS Thorium naturel	179
6.10	Coupe de la géométrie de boîte à gants simulée avec MCNP	182
6.11	Spectres gamma et neutron du mélange primaire $(U, Pu)O_2$	183
6.12	Spectres gamma et neutron du mélange primaire $(Th, U)O_2$ (1 mois après séparation)	185
C.1	Pour la réaction $^{17}O(n, \alpha)^{20}Ne^l$	209
C.2	Pour la réaction $^{18}O(n, \alpha)^{21}Ne^l$	210

Introduction

Les énergies fossiles en commençant par le charbon puis le pétrole et le gaz naturel ont permis à l'humanité de réaliser un formidable bon en avant dans un grand nombre de domaines et d'améliorer le niveau de vie de nombreux terriens. Jamais dans l'histoire de l'homme une telle avancée des sciences, des techniques, etc..., n'a été aussi rapide. Depuis plusieurs décennies l'humanité, toujours en croissance (population et économie), a pris conscience de la rareté des ressources énergétiques fossiles et des problèmes climatiques liés à leurs utilisations. Alors que la population mondiale croît rapidement et aspire à un niveau de vie plus élevé, la "production" de pétrole a atteint ou va atteindre un pic, dit pic pétrolier, dans plusieurs pays producteurs. Le pic pétrolier est le moment à partir duquel les quantités de pétrole extraites chaque année déclinent. On retrouve des pics similaires pour les autres énergies fossiles. A cette pénurie annoncée en combustibles fossiles s'ajoute le problème des modifications climatiques liées aux rejets de gaz à effet de serre. C'est ainsi que dans de nombreux pays, un regain d'intérêt est porté sur l'énergie nucléaire, peu émettrice de gaz à effet de serre et octroyant aux pays la possédant une relative indépendance énergétique. Dans ce contexte, une collaboration internationale a été initiée dans la recherche et le développement sur les réacteurs nucléaires du futur : dit de IV^{eme} génération. Cette collaboration, le forum génération IV (GIF en anglais), créée en 2000, a pour principaux objectifs :

- Optimiser l'utilisation des ressources naturelles ;
- Améliorer la sûreté nucléaire ;
- Minimiser les déchets ;

Pour atteindre ces objectifs, plusieurs lignes de recherches et développements ont été définies, amenant à envisager plusieurs concepts de réacteurs. Les concepts sur(ré)générateurs permettraient d'utiliser efficacement la matière fertile repoussant la problématique des ressources à un avenir lointain. La surgénération consiste à synthétiser plus de noyaux fissiles qu'il n'en est consommé dans le réacteur. Ce

INTRODUCTION

phénomène peut être basé sur deux couples de métaux, appelé cycle. Le cycle uranium/plutonium (U/Pu) et le cycle thorium/uranium (Th/U). À partir de captures neutroniques sur l'isotope fertile du cycle (^{238}U pour le cycle U/Pu et ^{232}Th pour le cycle Th/U) est créé un isotope fissile d'intérêt pour la production d'énergie (^{239}Pu pour le cycle U/Pu et ^{233}U pour le cycle Th/U). Le cycle Th/U présente plusieurs spécificités par rapport au cycle U/Pu qui seront décrits plus en détails au premier chapitre.

Cependant, depuis les années 2000, certains événements rendent le déploiement de nouvelles technologies de réacteurs surgénérateurs à l'horizon 2030-2040 plutôt incertain. En effet, la catastrophe de Fukushima a entraîné une perte de confiance de l'opinion publique mondiale. L'exploitation des gaz de schistes fait reculer le spectre de la pénurie des ressources fossiles. Certains grands pays du nucléaire, tel que l'Allemagne, se désengagent peu à peu de cette énergie. Les grandes politiques énergétiques nationales volontaristes, telles qu'à pu connaître la France dans les années 60-70 n'a plus cours dans les pays détenteurs des technologies les plus avancées. Ceci étant, les ressources fossiles sont limitées, les gaz à effet de serre sont, malgré la crise, toujours un problème, si bien que l'utilisation du nucléaire restera incontournable et l'avènement de filière surgénératrice devraient voir le jour avant la fin du siècle.

Afin de préparer l'avènement de ces réacteurs de nouvelles générations l'utilisation du thorium prend tout son sens. En effet les réacteurs surgénérateurs nécessitent de disposer d'un inventaire en matières fissiles artificielles (^{239}Pu ou ^{233}U) conséquentes. Des stocks de plutonium sont, dans certains pays, constitués par le retraitement de combustible à l'uranium enrichi, irradié en réacteurs à eau. Cependant la qualité du plutonium se dégrade au cours de son stockage. En effet, le ^{239}Pu ($T_{1/2}=24100$ ans) n'est pas le seul constituant du "vecteur" plutonium, un autre noyau fissile y est présent : le ^{241}Pu . Or cet isotope, ayant une demie vie de 14.4 ans, disparaît au cours du temps, dégradant du même coup le potentiel énergétique de cette matière. Une possibilité offerte par le thorium est la conversion du plutonium en ^{233}U ¹ ($T_{1/2} = 1.59.10^5$) par l'intermédiaire de combustible $(Th, Pu)O_2$. Ainsi, l'utilisation du thorium dans des réacteurs actuels permettrait d'apporter de la flexibilité quant à la gestion de la matière fissile.

L' ^{233}U et l' ^{235}U ne sont, malheureusement, pas les deux seuls constituants du vecteur uranium issus de l'irradiation de combustible $(Th, Pu)O_2$, et la présence de

1. le noyau fissile ^{235}U ($T_{1/2} = 7.0.10^8$) est également présent dans ce vecteur uranium

INTRODUCTION

l'isotope 232 de l'uranium peut compliquer la gestion (*e.g* transports du combustible usé, fabrication de combustible à partir de cet uranium ...) de cette ressource. En effet, les descendants de l' ^{232}U ($T_{1/2} = 69$ ans), émettent des rayonnements γ très pénétrants dont notamment un γ de 2.6 MeV provenant du ^{208}Tl . Les objectifs de cette thèse sont de quantifier et de déterminer les paramètres influençant la synthèse de l' ^{232}U dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) chargés en combustible ($(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$, $(\text{Th}, ^{233}\text{U})$ mais aussi dans les combustibles actuellement utilisés (UO_2 , $(\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2$). La synthèse de l' ^{232}U en combustible ($(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ et $(\text{Th}, ^{233}\text{U})$ sera également étudiée, comparativement au REP, dans une autre technologie de réacteur actuellement utilisée : le CANDU (CANadian Deuterium Uranium) et dans l'un des concepts de réacteur de IV^{eme} génération le plus étudié et bénéficiant du plus grand retour d'expérience : le réacteur à neutrons rapide refroidi au sodium (RNR-Na). Dans une seconde partie, l'étude se focalise sur l'impact de l'utilisation du thorium en REP sur l'aval du cycle du combustible (transports des combustibles usés, re-fabrication de combustible) au niveau de la radioprotection. Pour atteindre ce dernier objectif, il est indispensable de disposer d'un outil permettant de calculer les termes sources, à savoir les spectres énergétiques des différents rayonnements, issus des matières radioactives du cycle du combustible. Ainsi le développement et la validation d'un code de calcul baptisé CHARS (CHARacterization of Radioactives Sources) font partie intégrante de ce travail de thèse et sont présentés en détails dans ce rapport.

INTRODUCTION

Chapitre 1

Contexte

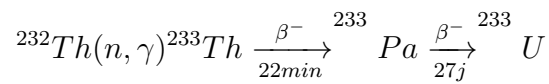
1.1 Généralités sur le cycle du thorium : Avantages et limites

Depuis peu, on peut lire dans la presse généraliste, et chez quelques auteurs, que le thorium serait "l'atome vert", que son utilisation en réacteur n'entraîne pas de déchets, qu'un accident de type Fukushima ne peut advenir, qu'une centrale au thorium ne peut amener à la fabrication de bombe, qu'il n'est pas nécessaire de l'enrichir etc... D'une certaine manière ces assertions douteuses ne sont pas totalement fausses : remplacer le combustible à base d'uranium et/ou plutonium par du thorium seul a, en effet, toutes les vertus précédemment citées, au détail près que le thorium n'est pas fissile par des neutrons lents et que, par conséquent, il ne produit pas d'énergie. Contrairement au thorium, l'uranium naturelle possède, à hauteur de 0.7%, un isotope fissile : l' ^{235}U , le reste étant constitué presque exclusivement d' ^{238}U . Le lecteur, peu au fait des mécanismes en jeu dans un réacteur, peut légitimement se questionner sur l'intérêt d'utiliser le thorium si ce dernier ne produit pas d'énergie. Le thorium a été nommé par Jons Jacob Berzelius en 1828 en référence au dieu scandinave du tonnerre : Thor. Le tonnerre amenant la pluie, ce dieu est également considéré comme celui de la fertilité. Et c'est justement la fertilité qui fait tout l'attrait du thorium. En effet, soumis à un flux de neutrons, le thorium (^{232}Th) se transmute en uranium fissile ^{233}U et c'est ce couple d'isotopes fertile/fissile ($^{232}\text{Th}/^{233}\text{U}$) qui présente certains avantages comparé à l'autre couple (appelé cycle) : $^{238}\text{U}/^{239}\text{Pu}$. Ce qui suit liste de façon la plus succincte possible les avantages et inconvénients du cycle Th/U comparativement au cycle U/Pu.

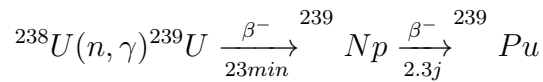
1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

1.1.1 Régénération du fissile en spectre thermique

La synthèse de l'isotope fissile à partir de l'isotope fertile pour chaque cycle s'écrit : Cycle Th/U :



Cycle U/Pu :



Des deux réactions et séries de décroissances précédentes, celle partant du thorium est favorisée en spectre thermique car le nombre de neutrons disponibles pour engendrer cette réaction est supérieur en cycle Th/U, le bilan neutronique est moins tendu. Ceci peut être exprimé de façon simple à travers le nombre de neutrons disponibles pour la surgénération, c'est à dire combien de neutrons sont encore disponibles pour réaliser cette réaction après que $1 + \alpha$ (1 neutron pour la fission, α capture stérile sur le fissile : $\alpha = \frac{\sigma_{capt}}{\sigma_{fission}}$) neutrons soient consommés pour maintenir la réaction en chaîne et que $1 + \alpha$ neutrons soient utilisés pour régénérer, par capture sur le noyau fertile, les $1 + \alpha$ noyaux fissiles précédemment utilisés. Ce modèle simplifié ne prend pas en compte les fuites de neutrons hors du coeur, les captures sur les autres isotopes présents, et les fissions rapides des noyaux fertiles. Cependant, il permet de comparer le pouvoir de régénération des différents cycles. Le noyau fissile produisant $\bar{\nu}$ neutrons à chaque fission le nombre de neutrons disponibles pour la surgénération, N_d , s'écrit : $N_d = \bar{\nu} - 2(1 + \alpha)$. La figure 1.1 compare N_d pour le cycle Th/U et U/Pu en fonction de l'énergie du neutron.

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

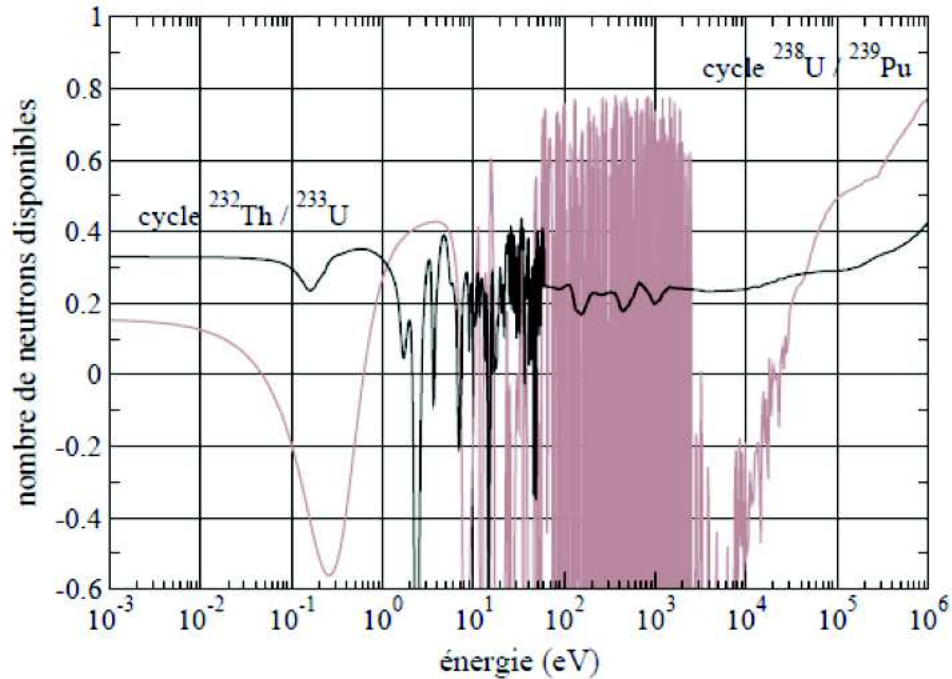


FIGURE 1.1 – Nombre de neutrons disponibles pour la surgénération [Bri10]

Il en ressort que ce nombre est positif à toutes les énergies pour le cycle Th/U et notamment pour des neutrons lents, si bien que, théoriquement la surgénération est possible en spectre thermique avec du combustible ThU. En revanche, le cycle U/Pu a largement l'avantage pour des neutrons rapides. Ainsi, l'intérêt principal du cycle Th/U vient des propriétés neutroniques (des sections efficaces) qui permettent en théorie la surgénération en spectre thermique : soit avec une technologie de réacteur bien maîtrisée. De plus, la section efficace de capture du ^{232}Th est supérieure à celle de l' ^{238}U en spectre thermique (7.4 barns en cycle Th/U contre 2.7 en cycle U/Pu en Réacteur à Eau Pressurisée [Ben05]). Ainsi pour un flux équivalent la synthèse du noyau fissile est plus rapide en cycle Th/U.

En réalité, le bilan neutronique est beaucoup plus tendu et en pratique l'empoisonnement par les produits de fissions, ne permet pas cette surgénération dans les réacteurs à eau pressurisée actuels [Gui09] [Val12] sans des modifications profondes de la géométrie (hétérogénéités) et/ou de gestion de la réactivité (assemblages mobiles). Le réacteur de Shippingport (USA), de géométrie complexe, est le seul exemple expérimental de surgénération en cycle Th/U en spectre thermique. Plus de détails, sur ce réacteur, sont disponibles à la section 1.1.5.1.

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

1.1.2 Initier le cycle

L' ^{233}U , tout comme le ^{239}Pu , n'existe pas dans la nature, il faut alors initier le cycle avec un noyau fissile existant. Ceci donne l'avantage au cycle U/Pu. En effet, le seul isotope fissile présent dans la nature se trouve dans l'uranium naturel, l' ^{235}U , où est également présent le noyau fertile du cycle U/Pu, l' ^{238}U . Ainsi, tous les réacteurs, à l'heure actuelle, fonctionnent sur le cycle U/Pu et la plupart utilisent de l'uranium naturel enrichi en ^{235}U . Certains pays, comme la France, ont fait le choix de traiter le combustible utilisé pour en extraire le plutonium et, mélangé avec l'uranium appauvri, il permet d'utiliser un peu plus le principe de la régénération du fissile présenté précédemment. Cependant, si la démonstration de la surgénération en cycle U/Pu a été faite dans le réacteur français PHENIX, aucun pays n'utilise actuellement le véritable potentiel du cycle U/Pu qui nécessite l'irradiation du combustible en réacteur à neutrons rapides et le multi-recyclage du Plutonium. Le thorium naturel est composé presque à 100% du ^{232}Th . Dépourvu de fissile, le thorium ne peut être utilisé seul en réacteur. Le choix du fissile à incorporer dans le combustible thorié se limite, à l'heure actuelle, à deux noyaux : l' ^{235}U et le ^{239}Pu . Plusieurs arguments tendent à faire préférer l'un ou l'autre : Tout d'abord, en cas d'utilisation d'un combustible homogène thorium-uranium enrichi, l' ^{233}U synthétisé se retrouve mêlé à l'uranium (^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{236}U ...), si bien que la qualité de l'uranium en sortie de coeur est discutable. De plus, l'enrichissement de l'uranium devra être important. Or il est limité, pour des raisons d'anti-prolifération, à 20%. De plus, ce type de combustible est plutogène ce qui n'est pas forcément un avantage d'un point de vue anti-prolifération. Un combustible thorium-plutonium détruit une partie du plutonium puisqu'il n'y a pas d' ^{238}U pour le régénérer. Ce dernier point peut être vu comme un énorme avantage pour les nombreux pays où le plutonium est considéré comme un déchet. Cependant le plutonium n'est disponible que pour les rares pays, dont la France, ayant mis en place une filière de retraitement. De plus la présence de plutonium cause une production accrue d'actinides mineurs (Am, Cm, Np).

1.1.3 Production de déchets

Étant donnée la place du ^{232}Th dans la table des noyaux (cf. figure 1.2), le nombre de réactions successives amenant à la synthèse d'actinides mineurs (neptunium, americium et curium) est plus élevé, si bien que leurs présences dans le combustible ThU utilisé sont moindres que dans un combustible UPu. Or, ce sont les isotopes de ces élé-

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

ments qui posent des problèmes dans la gestion des déchets à long terme. Cependant, certains noyaux lourds du cycle du thorium ne sont pas forcément plus facile à gérer. Le ^{232}Th produit par réaction (n,2n) du ^{231}Pa , d'une durée de vie de presque 330 000 ans. Ce dernier est responsable de la quasi-totalité de la radiotoxicité¹ du cycle ThU sur une période allant de 300 à 200 000 ans [Bri10].

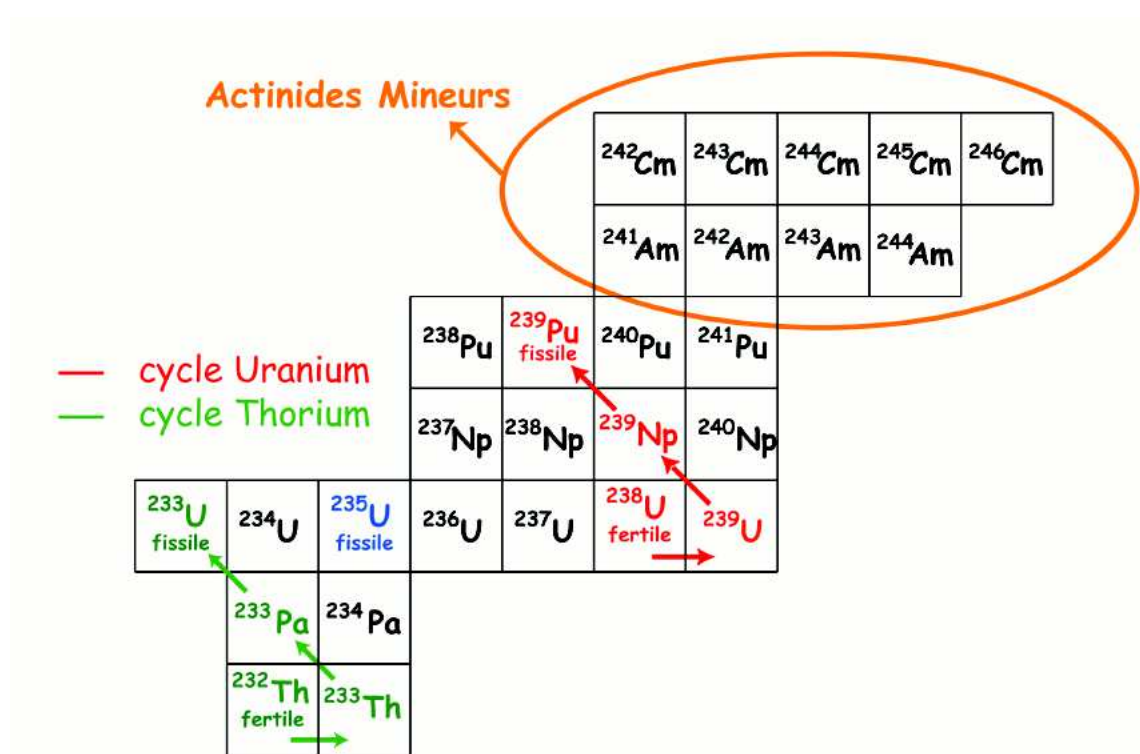


FIGURE 1.2 – Extrait de la table des noyaux

De plus, les rendements de fission cumulés sont différents entre l' ^{233}U et le ^{239}Pu , par exemple la fission de l' ^{233}U produit trois fois plus de ^{90}Sr (aussi bien en spectre thermique que rapide) et 6 % de plus de ^{137}Cs que celle du ^{239}Pu en spectre thermique (2% de moins en spectre rapide). Or, durant les trois cents premières années, la radiotoxicité et la chaleur résiduelle sont dominées par les produits de fission ayant une demie vie d'environ trente ans, soit essentiellement les deux noyaux précédemment cités. De surcroît, une fission d' ^{233}U libère une énergie de 199 MeV contre 210.7 MeV pour le ^{239}Pu et 213.8 MeV pour le ^{241}Pu , si bien que pour une production d'énergie identique, le cycle Th/U produit environ 6% de plus de produits de fission

1. Dose perçue en cas d'ingestion de matières radioactives

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

que le cycle U/Pu. La référence [Bri10] compare la radiotoxicité des déchets produits par le cycle Th/U et U/Pu en spectre rapide (cf. figure 1.3). Dans cette étude du combustible $(Th, U)O_2$ et $(U, Pu)O_2$ sont irradiés en réacteur à neutrons rapides, où le noyau fertile et le fissile de chaque cycle sont recyclés jusqu'à atteindre l'équilibre (la composition du combustible n'évolue plus entre deux rechargements). Cette étude montre que jusqu'à cinquante ans, la radiotoxicité des déchets est légèrement plus élevée en Th/U qu'en U/Pu du fait des produits de fission. Puis, entre 100 et 4000 ans l'avantage revient au thorium (jusqu'à dix fois moins radiotoxique). À cause du ^{231}Pa , les courbes se recroisent à 4000 ans. Enfin, aux alentours de $4 \cdot 10^5$ ans, le thorium reprend l'avantage. Ceci étant, pour des temps courts après l'irradiation (de l'ordre de la dizaine d'années), la chaleur résiduelle à court terme est moindre pour le cycle Th/U. En effet, comme l' ^{233}U produit plus de ^{90}Sr et de ^{137}Cs , il produit moins de produits de fissions à vies courtes.

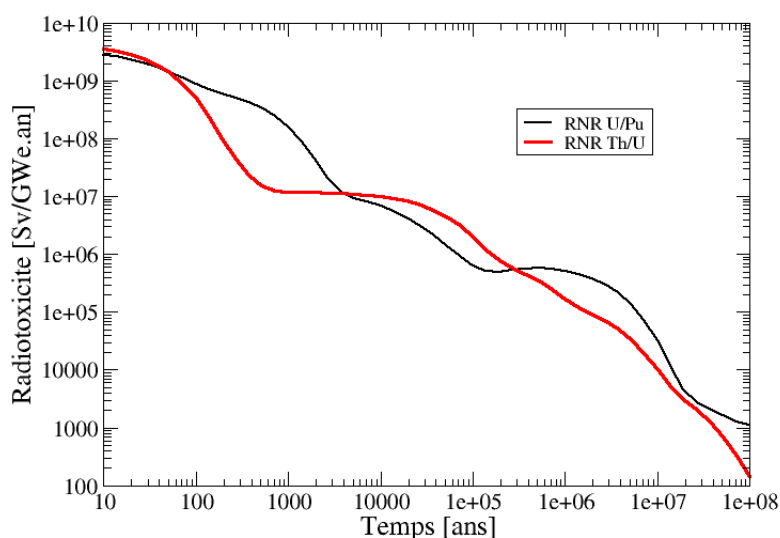


FIGURE 1.3 – Radiotoxicité comparée des déchets issus du cycle U/Pu et Th/U. Courbe reproduite avec l'aimable autorisation de Julie Brizi [Bri10].

Un autre actinide typique des combustibles thoriés est problématique pour le cycle Th/U, il s'agit de l' ^{232}U . Il est introduit dans la section suivante, et l'étude de sa production en réacteur et de son impact sur le cycle du combustible fait l'objet de cette thèse.

1.1.4 Problématique de l'uranium 232

L' ^{232}U est produit en réacteur par différentes chaînes de réactions, dont la plus importante passe par une réaction (n,2n) sur le ^{232}Th suivit d'une capture sur le ^{231}Pa . **L'étude des différents mécanismes amenant à la synthèse de l' ^{232}U dans les combustibles thoriés et ceux du cycle actuel font l'objet de la première partie de cette thèse. Le chapitre 3 étudie sa synthèse en REP et le chapitre 4 la compare à la production en réacteur à neutrons rapides (RNR) et en réacteur CANDU.** L' ^{232}U est radioactif α avec une demi-vie de $68,9 \pm 0,4$ ans. Après la décroissance de son premier descendant, le ^{228}Th de période $1,9116 \pm 0,0016$ ans, la chaîne de l' ^{232}U arrive rapidement au ^{208}Pb en passant par le ^{208}Tl qui émet un γ de 2.6 MeV. La figure 1.4 montre la chaîne de décroissance de l' ^{232}U ainsi que le spectre γ^2 au bout de 10 ans de décroissance. L'activité du ^{228}Th et, par conséquent, de ses descendants (périodes des descendants très courtes) atteint un maximum à $t_m = \ln\left(\frac{\lambda_{228\text{Th}}}{\lambda_{232\text{U}}}\right) \cdot \frac{1}{\lambda_{228\text{Th}} - \lambda_{232\text{U}}} = 10,2$ ans (voir N.B Évolution du ^{228}Th). C'est donc à 10.2 ans après la fin de l'irradiation que de l'uranium contenant l'isotope 232 est le plus dangereux vis à vis de l'irradiation externe.

2. Spectre γ calculé par CHARS (cf. chapitre 5)

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

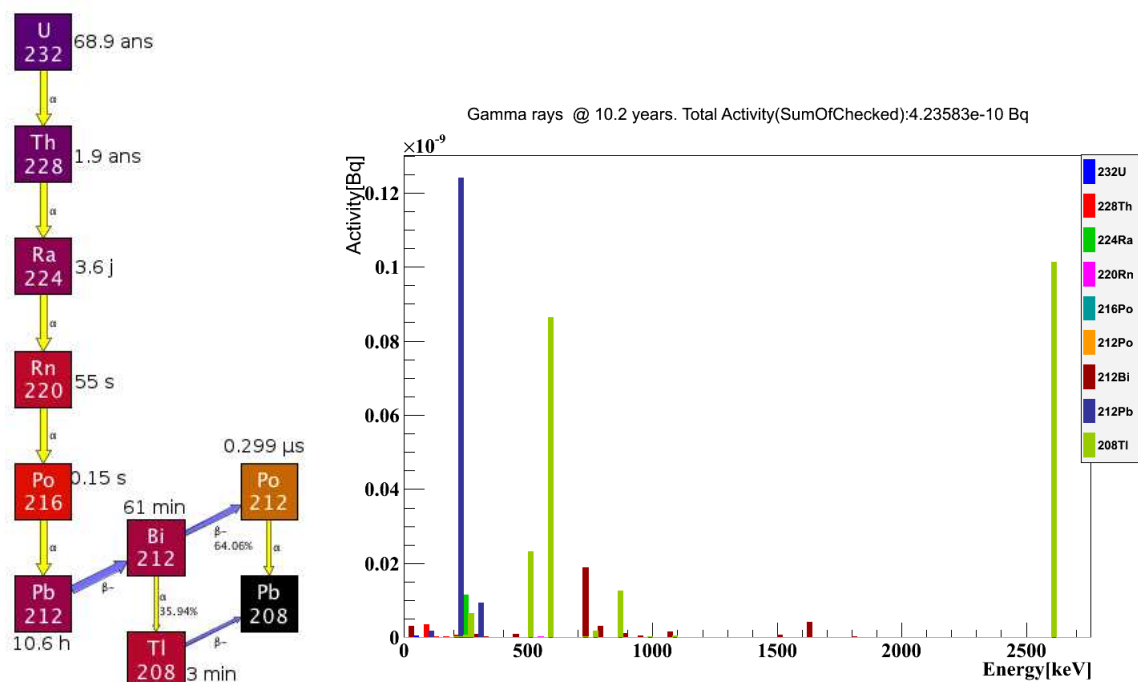


FIGURE 1.4 – *Gauche* : Chemin de décroissance de l' ^{232}U . *Droite* : Spectre γ pour un noyau d' ^{232}U ayant décréut pendant 10.2 ans.

La présence de l' ^{232}U dans l'uranium valorisable issu d'une première irradiation peut s'avérer problématique, notamment pour les combustibles thoriés qui en produisent bien plus que les combustibles du cycle U/Pu. En effet la présence de cet isotope va impacter l'aval du cycle et en particulier la fabrication de nouveaux combustibles à partir de l'uranium synthétisé en cœur. **L'étude de l'impact, au niveau radioprotection, sur l'aval du cycle de l'introduction du thorium fait l'objet du chapitre 6.** Cependant afin de se rendre compte dès à présent de la dangerosité de l' ^{232}U , un calcul simple est présenté : il consiste à calculer le débit de dose reçu à 30 cm d'une sphère de 5kg d' ^{233}U métal contenant diverses proportions d' ^{232}U . La figure 1.5 donne les débits de doses pour diverses teneurs en ^{232}U , fonction du temps après la séparation chimique de l'uranium. Est également indiqué sur cette figure les limites de débit de dose fixées par les articles 5 et 6 de l'arrêté zonage du 15 mai 2006 [Arr06] et la dose létale 50^3 , notée DL_{50} . La teneur en ^{232}U dans l'uranium issu de combustible thorié irradié en REP étant de l'ordre d'un demi pour cent, il est clair que la manipulation de telles matières nécessite des

3. Dose causant la mort de 50% d'une population dans les 30 jours suivant l'irradiation

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

précautions particulières. Si cet aspect est clairement pénalisant pour le cycle du thorium en revanche il peut être vu comme un avantage en terme de prévention de la prolifération. En effet l' ^{233}U contaminé à l' ^{232}U présente des risques pour la santé des travailleurs et des militaires mais également pour l'électronique embarquée des vecteurs de la bombe.

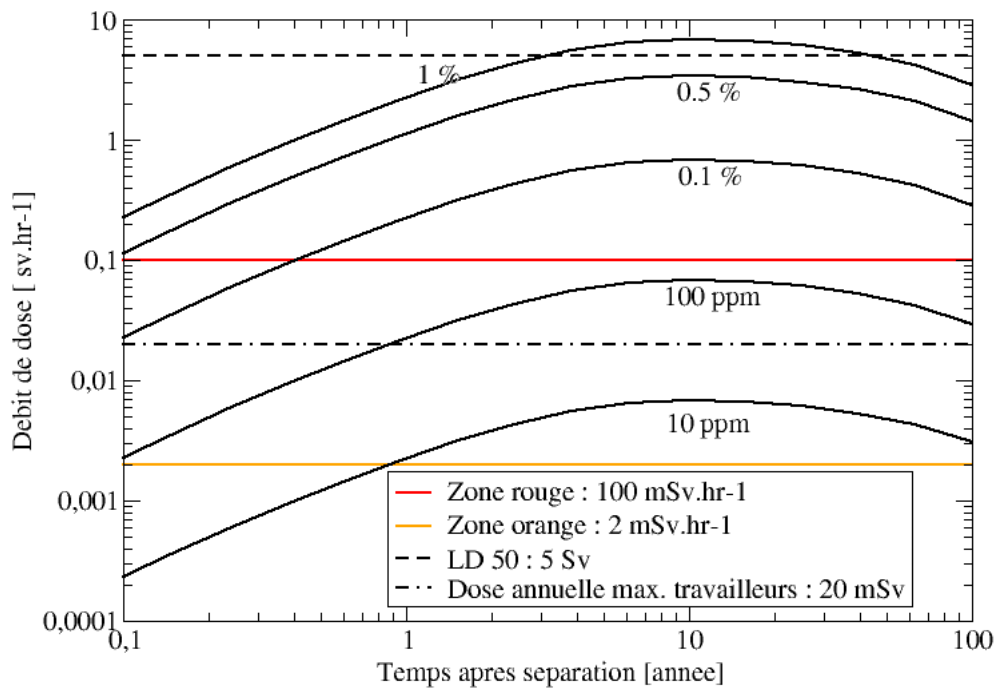


FIGURE 1.5 – Dose à 30 cm de 5 kg d' ^{233}U contenant de l' ^{232}U .

Cet isotope est également dimensionnant pour le cycle U/Pu au niveau de l'enrichissement de l'uranium de retraitement puisque la présence de ce noyau et de l' ^{234}U nécessite une ligne spécialement conçue pour l'uranium de retraitement avec des blindages supplémentaires.

Le calcul de dose présenté ici a été réalisé à l'aide de MURE/MCNP, ces deux codes sont présentés dans la section 1.4. De plus les outils permettant de calculer les termes sources, c'est à dire les spectres énergétiques des différents rayonnements provenant des matières radioactives du cycle du combustible ont été développés au cours de cette thèse. Leurs

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

fonctionnements et leurs validations font l'objet du chapitre 5 .

N.B Évolution du ^{228}Th

L'équation différentielle couplée de l'évolution de la quantité de ^{228}Th issue de la désintégration de ^{232}U s'écrit :

$$\frac{dN_{232\text{U}}}{dt} = -\lambda_{232\text{U}} N_{232\text{U}}$$

$$\frac{dN_{228\text{Th}}}{dt} = -\lambda_{228\text{Th}} N_{228\text{Th}} + \lambda_{232\text{U}} N_{232\text{U}}$$

La solution pour $N_{228\text{Th}}(t)$ s'écrit :

$$N_{228\text{Th}}(t) = \frac{\lambda_{232\text{U}}}{\lambda_{228\text{Th}} - \lambda_{232\text{U}}} N_{232\text{U}}^0 (e^{-\lambda_{232\text{U}} t} - e^{-\lambda_{228\text{Th}} t})$$

avec $N_{232\text{U}}^0$ le nombre de noyaux d' ^{232}U à $t=0$. L'activité du ^{228}Th comme de ses descendant (en effet leurs périodes sont très faibles, cf. figure 1.4) est maximale quand t vérifie $\frac{d\lambda_{228\text{Th}} N_{228\text{Th}}}{dt} = 0$ Ce temps noté t_m est :

$$t_m = \ln\left(\frac{\lambda_{228\text{Th}}}{\lambda_{232\text{U}}}\right) \cdot \frac{1}{\lambda_{228\text{Th}} - \lambda_{232\text{U}}}$$

1.1.5 Autres aspects du cycle Th/U

L'effet protactinium Les voies amenant à la synthèse de ^{233}U et du ^{239}Pu du cycle Th/U et U/Pu passent par deux décroissances β^- successives. Si la première décroissance est, pour les deux cycles, très rapide (de l'ordre d'une vingtaine de minutes), en revanche la deuxième est plus longue pour les deux cycles, et environ dix fois plus longue pour le cycle Th/U que U/Pu. En effet la décroissance du ^{239}Np a une période de 2.3 jours contre 27 jours pour le ^{233}Pa . La longévité de ce noyau précurseur de ^{233}U entraîne au moins deux limitations. Tout d'abord, des problèmes de réactivité en début d'irradiation, en effet du fait de ce retard à la régénération, la réactivité chute brutalement avant de reprendre avec la mise à l'équilibre du ^{233}Pa (au bout d'une centaine de jours). Puis, à l'arrêt du réacteur, la réactivité augmente pendant une centaine de jours du fait de la décroissance du ^{233}Pa , ceci pouvant éventuellement causer des problèmes de sûretés. Deuxièmement, étant donné sa période longue, la capture radiative sur le ^{233}Pa rentre en compétition

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

avec sa décroissance. Ceci provoque la perte d'un noyau fissile et d'un neutron qui aurait potentiellement pu servir à la régénération. Plus le flux est élevé, plus cet effet est important. Le rapport $\frac{\lambda_{233Pa}}{(\sigma(n,abs)\phi + \lambda_{233Pa})}$ estime la proportion de ^{233}Pa qui survit à la capture radiative. Le tableau 1.1 compare ce chiffre pour du combustible Th/U et U/Pu en REP au milieu de l'irradiation. Afin de limiter les pertes d' ^{233}U par capture sur le ^{233}Pa il faut diminuer le flux et donc la puissance du réacteur.

Tableau 1.1 – Proportion de précurseurs du fissile qui survivent à la capture

Noyau	$\sigma(n,abs)$ barns	ϕ $n.s^{-1}cm^{-2}$	λ s^{-1}	$\frac{\lambda}{(\sigma(n,abs)\phi + \lambda)}$ %
^{233}Pa	21.5	$3.5 \cdot 10^{14}$	$2.97 \cdot 10^{-7}$	97.5
^{237}Np	19.0	$3.1 \cdot 10^{14}$	$3.41 \cdot 10^{-6}$	99.8

Propriétés de l'oxyde [Ben05] La quasi-totalité des combustibles utilisés dans les réacteurs de puissance sont des oxydes. Les caractéristiques thermiques du dioxyde de thorium (ThO_2) semblent être avantageuses à plusieurs égards. En effet, le dioxyde de thorium est l'un des matériaux les plus réfractaires (résistance à la chaleur), son point de fusion est de 3640 K contre respectivement 3120 K et 2620 K pour l' UO_2 et le PuO_2 . La conductivité thermique du ThO_2 est à 773 K 30 % supérieur à celle du UO_2 et du PuO_2 . Le coefficient de dilatation thermique est légèrement plus faible que celui du UO_2 et du PuO_2 . Ces caractéristiques autorisent des marges de sûreté plus confortables et/ou offre la possibilité d'étendre les limites opérationnelles en vue d'obtenir des taux de combustion⁴ plus élevés et un rendement thermique plus important (température du caloporteur plus importante).

En plus de ces bonnes propriétés thermiques le dioxyde de thorium est très stable chimiquement car il se trouve, sous forme ThO_2 , dans son degré d'oxydation maximal, contrairement à l'uranium qui se trouve être plus stable sous forme U_3O_8 ⁵. Cependant, cette plus grande stabilité chimique rend le traitement du combustible thorié usé plus laborieuse par le procédé THOREX que le traitement du combustible usé du cycle U/Pu avec le procédé PUREX.

Ressources naturelles Le thorium se trouve à une teneur moyenne de 10 ppm dans la croûte terrestre[Ben05] soit environ 3 fois plus que celle de l'uranium. Ce-

4. Quantité d'énergie extraite d'une tonne de métal lourd

5. le stockage de l'uranium nécessite une étape d'oxydation supplémentaire ($UO_2 \rightarrow U_3O_8$)

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

pendant les connaissances des réserves économiquement exploitables sont limitées et incomplètes. En effet, à l'heure actuelle, l'utilisation du thorium se concentre dans quelques applications de niches telles que la fabrication de tissu incombustible pour les manchons à incandescences, ou encore des catalyseurs. Le thorium issu du raffinage des minerais de terres rares suffit amplement à alimenter ce marché, si bien que la prospection des minerais de thorium n'est pas au même niveau que celle des minerais d'uranium. Les plus grandes réserves connues de thorium se situent dans des dépôts alluvionnaires et dans les sables de plages sous forme de monazite, un minéral de phosphate contenant des terres rares du thorium et de l'uranium. Bien que les réserves de thorium soient plus importantes que celles d'uranium cela ne constitue pas un avantage majeur puisque pour les deux cycles les réserves de noyaux fertiles sont largement suffisantes pour assurer l'avenir du nucléaire pour plusieurs siècles. Les trois plus grandes réserves de thorium se situeraient, au Brésil, en Turquie et en Inde [Ben05]. L'extraction du thorium de la monazite est relativement plus facile que l'extraction de l'uranium de son minerai [Ben05], de plus l'équivalent thorium du Radon 222 (^{222}Rn), le Radon 220 (^{220}Rn), encore appelé thoron, à une période beaucoup plus courte (55 secondes contre 3.8 jours), si bien qu'il a peu de chance d'être inhalé.

Longévité des fissiles Les demi-vies de l' ^{233}U et du ^{239}Pu sont comparables à l'échelle humaine (respectivement $1.6 \cdot 10^5$ ans et 24 000 ans). Cependant les captures successives sur ces noyaux (plus probables pour le ^{239}Pu) amènent à la synthèse du fissile ^{235}U (cycle Th/U) et du ^{241}Pu (cycle U/Pu). Si la période de l' ^{235}U est grande en revanche celle du ^{241}Pu n'est que de 14.3 ans. De plus, la quantité de ^{241}Pu est proche de 10% du vecteur plutonium à l'issue de l'irradiation dans un REP. Par conséquent la quantité de noyaux fissiles dans le vecteur plutonium va diminuer au cours d'une vie d'homme, le vecteur uranium du cycle Th/U conserve, lui, sa qualité sur une période plus que raisonnable. Le déploiement à grande échelle, dans les prochaines décennies, de technologies régénératrices basées sur le cycle du thorium est peu crédible. Ceci étant, l'utilisation du thorium dans des réacteurs actuels permettrait de convertir, par l'intermédiaire de combustible $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$, le plutonium périssable en fissile de bonne qualité (l' ^{233}U). Ainsi un stock d' ^{233}U se constitue en attendant la maturation des concepts régénérateurs basés sur le cycle du thorium. Dans ce cadre, ce travail de thèse étudie l'impact, au niveau radioprotection, de l'introduction du thorium sur quelques points de l'aval du cycle français. Les

1.1. GÉNÉRALITÉS SUR LE CYCLE DU THORIUM : AVANTAGES ET LIMITES

points clés du cycle du combustible français sont présentés dans la section 1.2.

1.1.5.1 Expériences et concepts

Très tôt dans l'histoire de l'énergie nucléaire les potentialités du thorium en tant qu'élément fertile capable de régénérer l'isotope fissile, ^{233}U , en réacteur thermique ont été reconnus. Plusieurs réacteurs expérimentaux et autres prototypes ont été mis en service durant les années 50 jusqu'au milieu des années 70. Une liste détaillée des principaux réacteurs expérimentaux est disponible dans la référence [Ben05]. Les plus marquants étant :

le réacteur surgénérateur à eau légère de Shippingport (USA) (LWBR : *Light Water Breeder Reactor*)

Le réacteur de Shippingport [Cla93] fut le premier réacteur civile à eau pressurisée (REP) connecté au réseau (1957). Il amena notamment au développement des gaines en alliages de zirconium. Ce réacteur a connu plusieurs phases au cours de son histoire jusqu'à un nouveau cœur ayant pour objectif de démontrer la surgénération, en réacteur à eau, de l' ^{233}U . Ce cœur était composé de 12 modules hexagonaux entourés par 15 modules réflecteurs en ThO_2 , ces derniers permettant de "récupérer" les neutrons "fuyards" pour convertir plus de ^{232}Th en ^{233}U . Chacun des douze modules hexagonaux était constitué de deux régions. La région centrale, composée d'un assemblage combustible ($\text{Th}, ^{233}\text{U}$) O_2 à hauteur de 5% massique d' ^{233}U était mobile. Cette zone, ayant la plus grande teneur en fissile, est la région où les neutrons sont principalement produits : c'est l'assemblage nourricier (*Seed assembly*). Autour de cette assemblage une couverture fertile, fixe, de dioxyde de thorium, était disposée, contenant environ 2% massique d' ^{233}U . Cette configuration complexe permettait de contrôler la réactivité en déplaçant la zone nourricière plus ou moins profondément dans la zone couverture. En effet, cette solution permet d'augmenter ou de diminuer les fuites de neutrons vers les réflecteurs selon l'usure du combustible. De plus, ce contrôle de la réactivité évite l'utilisation d'absorbants neutroniques qui détériorent le nombre de neutrons disponibles pour la surgénération. La densité de puissance (et donc le flux) était assez faible ($\sim 6 \text{ W/g}$ contre $\sim 35 \text{ W/g}$ pour un REP actuelle) limitant de ce fait les captures indésirables sur le ^{233}Pa . Ainsi ce réacteur démontra la possibilité d'un réacteur à eau surgénérateur en cycle thorium. La quantité d' ^{233}U créée fut, à la fin de la démonstration, légèrement supérieure à la quantité initiale.

Les réacteurs à sels fondus

1.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

Les réacteurs à sels fondus sont souvent associés au cycle du thorium. En effet, l'ORNL a conçu dans les années 1960 un projet de réacteur de puissance (le MSBR) fonctionnant grâce à un mélange de sel de fluorure de lithium, fluorure de thorium et fluorure de béryllium [PK66]. Dans cette optique, les américains ont fait fonctionner pendant quelques années un réacteur à sel fondu de faible puissance. Ce démonstrateur a fonctionné à l' ^{233}U et du ZrF_4 pour simuler le comportement physicochimique du ThF_4 faisait parti du sel. L'avantage du sel fondu réside dans le caractère liquide du combustible. En effet, nous avons vu que si la régénération est en principe possible en spectre thermique grâce au cycle thorium, elle l'est en pratique très limitée dû à l'empoisonnement des produits de fission qui apparaissent au fur et à mesure de l'évolution. La solution est apportée par une extraction en ligne de ces produits de fission comme dans le cas du réacteur CANDU ce qui impose des burn-ups faibles. Dans le cas d'un combustible liquide, on peut traiter le combustible pendant le fonctionnement en imaginant une unité de retraitement en ligne. Dans le cas du MSBR, les américains avaient envisagés un retraitement complet du sel combustible en 10 jours ce qui impliquait des débits considérables. Dans les années 2000, le CNRS a réinvesti le sujet et a ré-évalué les performances du MSBR pour essayer d'en lever les points de blocage. Suite à une série d'optimisation, le concept a grandement évolué vers un réacteur fonctionnant en spectre rapide, ayant une forte densité de puissance et un retraitement très simplifié. Le sel est un mélange de fluorure de lithium, de fluorure de thorium et de fluorure d'uranium. Le concept nommé aujourd'hui MSFR (Molten Salt Fast Reactor) est un des systèmes reconnu par le forum international GEN IV ([Dol10]).

1.2 Le Cycle du combustible

Une partie de ce travail de thèse a pour objet la radioprotection de quelques points du cycle du combustible en cas d'utilisation de combustibles thoriés dans les REP français. Cette section résume les principales étapes du cycle du combustible tel qu'il est actuellement défini en France.

Un cycle du combustible est l'ensemble des opérations industrielles nécessaire à sa gestion. Pour les combustibles chimiques tel que le pétrole ces opérations consistent en l'extraction de la matière brut, sa transformation (raffinage), sa distribution et enfin sa consommation pour le transport, la production de chaleur ou encore la génération d'électricité. Le cycle du combustible nucléaire diffère essentiellement du

1.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

chimique par la gestion des matières issues de la "combustion". En effet, les produits des réactions chimiques sont simplement rejetés dans l'environnement et leur potentiel énergétique est quasi-nul. En revanche le combustible nucléaire irradié, matière durablement chaude et radioactive nécessite d'être confiné pendant très longtemps. De plus cette matière contient encore un potentiel énergétique très important. Ainsi, deux politiques de gestion de cette matière peuvent être appliquées, soit l'uranium et le plutonium présents dans le combustible irradié sont considérés, au même titre que les produits de fissions et les actinides mineurs, comme des déchets, ou bien ils sont considérés comme matières valorisables et sont séparés des déchets ultimes pour une utilisation future. La première option est appelée cycle ouvert, la deuxième, cycle fermé. Du fait de l'excellente régénération du noyau fissile en cycle Th/U en spectre thermique, l'option cycle fermé est incontournable pour le cycle Th/U.

1.2.1 Amont du cycle

1.2.1.1 Extraction et conversion

L'amont du cycle commence par l'extraction de la matière première des mines (minerai d'uranium, souvent de la *pechblende*). Ce minerai est en général concentré sur place, la teneur en dioxyde d'uranium de ces uranates est alors d'environ 75 %, ce concentré de couleur jaune est communément appelé *Yellow cake*. Arrivée en France, cette matière est purifiée dans l'usine de COMURHEX. Le procédé est le suivant : le concentré d'uranium est dissout dans l'acide nitrique. L'uranium maintenant sous forme de nitrate est extrait par un solvant organique : le célèbre TBP c'est à dire phosphate de tributyle, solvant également utilisé lors du traitement du combustible usé. L'uranium maintenant purifié est réextrait sous forme de nitrate d'uranyle puis dénitriqué, il se retrouve ainsi sous forme UO_2 . A partir d'ici, selon la filière du réacteur⁶, le dioxyde d'uranium peut subir un nouveau traitement chimique en vue de l'étape d'enrichissement isotopique. Cette étape, dite de fluoration, consiste à rendre l'uranium gazeux en vue de l'enrichir en ^{235}U . Le dioxyde d'uranium est tout d'abord converti en tétrafluorure d'uranium (UF_4 solide) à l'usine de Malvési puis en hexafluorure d'uranium (UF_6 gazeux à 56 °C et à la pression atmosphérique) sur le site de Pierrelatte.

6. La technologie Canadienne CANDU ne nécessite pas d'enrichissement (cf. 2.1.3.1) tout comme les anciens UNGG Français

1.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

1.2.1.2 Enrichissement

C'est également à Pierrelatte que l'enrichissement a lieu. Les deux technologies actuellement mises en place à l'échelle industrielle utilisent toutes deux la différence de masse infime qui existe entre l' ^{235}U et l' ^{238}U . Dans le procédé de diffusion gazeuse, on exerce une différence de pression entre une paroi constituée de petits pores d'un centième de micron, les molécules d' $^{235}\text{UF}_6$ ayant une vitesse légèrement plus grande du faite de leurs masses plus faibles ont plus de chance de passer la barrière (elles frappent plus souvent la paroi). Cette technologie, utilisée jusqu'à peu en France, nécessitait un travail de compression du gaz considérable, par exemple, l'usine George Besse appelait une puissance électrique de 3 GW soit la production électrique des trois réacteurs EDF voisins. La technologie d'ultracentrifugation, moins gourmande en énergie, comme son nom l'indique, se base sur la force centrifuge, en faisant tourner à une vitesse ahurissante un bol cylindrique au centre duquel est admis l' UF_6 . L' $^{238}\text{UF}_6$ migre préférentiellement sur les bords alors que l' $^{235}\text{UF}_6$ se retrouve plus proche du centre.

1.2.1.3 Fabrication de la céramique combustible

L' UF_6 enrichi est transporté à l'usine de fabrication du combustible de Romans puis converti sur place en poudre d' UO_2 . Cette poudre est compactée sous forme cylindrique (pastille) puis chauffée dans un four à haute température (1700°C) et, finalement, les pastilles sont empilées dans des tubes de 4 m de long en alliage de zirconium qui constituent la gaine du combustible. Ces aiguilles combustibles sont par la suite réunies en lots de 264 ce qui constitue un assemblage combustible.

1.2.2 Aval du cycle

1.2.2.1 Piscine de désactivation

Une fois le combustible épuisé (car empoisonné par les produits de fission ou atteignant sa limite de tenu à l'irradiation), il est déchargé dans la piscine, dite de désactivation. Cette piscine est employée dans toutes les technologies de réacteurs. Le rôle de cette piscine, pouvant atteindre près de 13m de fond, est d'extraire la chaleur résiduelle du combustible pendant les premiers mois suivant le déchargement. L'eau

1.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

fait également office d'écran de protection radiologique. La chaleur, provenant essentiellement de la radioactivité des produits de fissions, décroît de façon exponentielle : elle représente 7% de la puissance nominale juste après l'arrêt du réacteur puis environ 1 % au bout de deux heures et demi et enfin environ 0.5 pour mille au bout d'un an ; ces chiffres dépendent du temps d'irradiation [Lig97]. Le refroidissement de la piscine est assuré par des échangeurs de chaleurs, la défaillance de ces systèmes peut entraîner l'évaporation de l'eau puis la fusion du combustible (*e.g* Fukushima). Les paniers, dans lesquels les assemblages sont rangés, sont constitués d'aluminium boré et l'eau contient de l'acide borique, afin d'éviter un éventuel accident de criticité.

1.2.2.2 Transport de la piscine vers l'usine de retraitement

Une fois que le combustible passe sous les seuils de chaleurs et d'activités imposés par leurs transports, ils sont conditionnés par douze dans des châteaux de transport. Ces derniers sont constitués d'une énorme virole en acier (cylindre) dans lequel un réseau de paniers est prêt à accueillir le combustible utilisé. Sur cette virole sont soudés des ailettes en cuivre entre lesquelles est coulée une résine servant de protection neutronique. La virole d'une épaisseur conséquente fait office de protection gamma. Cet ensemble château - combustible utilisé, qui constitue un colis, est amené par route et par rail jusqu'au centre de retraitement du combustible utilisé de La Hague. **La comparaison des doses à la surface d'un château de transport entre du combustible du cycle U/Pu et du cycle Th/U sera présenté dans le chapitre 6**

1.2.2.3 Usine de retraitement

Arrivé à La Hague le combustible est déchargé dans une piscine semblable à celle du réacteur à ceci près que sa taille est sensiblement plus grande. L'épaisseur de la colonne d'eau est d'environ 8 mètres. Le combustible peut être retraité dès qu'une période de refroidissement total (piscine de désactivation + piscine de La Hague) de 4 ans a été observée.

Placé sur la pointe du Cotentin, l'usine de La Hague impressionne par sa taille et par les traitements de chocs que subissent les 1700 tonnes de combustibles usés traités chaque année. Ici, on cisaille, on dissout, on extrait, on conditionne de la matière hautement radioactive. Les produits finaux sont le dioxyde de plutonium, le nitrate

1.2. LE CYCLE DU COMBUSTIBLE

d'uranyle et les déchets ultimes (produits de fission et actinides mineurs) sous formes de verres. Les procédés chimiques mis en jeu sont complexes (procédé PUREX) et sont décrits en détails dans la référence [Pat02]. La faisabilité du retraitement des combustibles thoriés par le procédé THOREX a été démontré aux États-unis il y a plus de 50 ans [Gre07]. Cependant le thorium, plus difficile à dissoudre, nécessite l'ajout, dans la solution d'acide nitrique, de fluor dont l'effet corrosif sur les éléments de structure du procédé, requiert l'ajout d'aluminium qui, passant dans le flux des produits de fission, augmentent la quantité de déchets d'environ 50 %. De plus, le combustible $(Th, Pu)O_2$ pouvant être choisi pour amorcer le cycle Th/U , le procédé THOREX devra être utilisé de concert avec le procédé PUREX pour traiter ces 4 flux de matières : thorium, uranium, plutonium et produits de fissions + actinides mineurs. Aucune expérience industrielle n'existe pour ce double procédé [Ben05]. **Des précautions supplémentaires de radioprotection devront être appliqués sur le conditionnement de l'uranium contaminé à l' ^{232}U de même que pour le thorium contaminé par son descendant (^{228}Th) (cf. chapitre 6).**

1.2.2.4 Devenir des matières

Les matières valorisables issues du retraitement (Pu,U) sont transportées dans différentes usines en vue d'une nouvelle irradiation ou d'un stockage, les verres de déchets sont stockés à La Hague et attendent leurs stockage définitif. Le nitrate d'uranyle, liquide, est transporté en citerne jusqu'à l'usine de conversion du Tricastin où il est converti en U_3O_8 . Les deux tiers sont stockés sur place et considérés comme réserves stratégiques, le tiers restant, qui contient encore 1% d' ^{235}U , peut être ré-enrichi mais seulement dans les usines à ultra-centrifugation. De part la conception modulaire de ces usines, une ligne d'enrichissement, recevant spécialement cet uranium plus radioactif, peut être mise en service. Jusqu'à maintenant, seules deux usines au monde en sont capables : URENCO au Pays-Bas et TENEX en Russie. La nouvelle usine française, Georges-Besse II, en sera capable aux alentours de 2020. Cet uranium de retraitement enrichi fait fonctionner deux réacteurs français (CNPE de CRUAS). Le dioxyde de plutonium sous forme de poudre est conditionné dans un emballage du genre poupée russe, la "poupée" la plus externe, est constituée d'un blindage neutronique. Ce colis est réceptionné sur le site de fabrication du combustible MOX : MELOX à Marcoule.

1.2.2.5 Fabrication du MOx

Dans cette usine, les poudres d' UO_2 appauvri (provenant de l'étape d'enrichissement) et de PuO_2 sont mélangés en vue d'obtenir le combustible MOx. Le procédé mis en oeuvre est le procédé MIMAS (*Micronized MASTer blend*). Un premier broyage de ces deux poudres est réalisé jusqu'à l'obtention d'un mélange homogène, la teneur massique en PuO_2 est alors de 30 %. Un second broyage où de l' UO_2 est ajouté afin d'amener ce dernier à la teneur souhaitée en plutonium (de 3 % à 10 %) est effectué. Ces deux étapes sont nécessaires pour obtenir un mélange homogène afin que les futures fissions soient uniformément repartis. Les pastilles sont mis en forme par pressage puis frittés à 2000 K (assure la cohésion des pastilles sans les porter à fusion), elles sont finalement rectifiées (diminution du rayon des pastilles), contrôlées, puis empilées dans les gaines en alliage de zirconium. La présence du plutonium complexifie la fabrication des pastilles comparativement à la fabrication des pastilles UO_2 . Le procédé est automatisé, l'homme n'intervenant que pour la maintenance. **Dans le chapitre 6 l'hypothèse est faite que la fabrication des combustibles $(Th, U)O_2$ utilisera le même procédé, le thorium prenant la place de l'uranium et l'uranium celle du plutonium. Le chapitre 6 estime l'impact d'un tel changement sur la radioprotection de l'atelier de mélange primaire étant donné la présence de ^{232}U .**

La forte émission neutronique du combustible MOX, nécessite un emballage spécial (le MX6) pour son transport jusqu'au réacteur. L'utilisation de châteaux de transport de combustibles usés (*e.g* le TN12) peut également faire l'affaire.

Une fois ce combustible irradié, déchargé, refroidi, transporté et stocké dans les piscines de La Hague le cycle s'arrête. Certes il reste toujours de la matière valorisable dans ce combustible usé, cependant les vecteurs isotopiques de l'uranium et du plutonium sont trop dégradés pour être utilisés de façon rentable. Les combustibles MOX usés sont donc stockés en attendant l'avènement de la filière à neutrons rapides moins sensibles à la qualité du vecteur plutonium.

Cette thèse vise, en partie, à étudier l'impact de l'introduction du thorium au niveau radioprotection dans un cycle du combustible semblable au cycle français. Cycle dans lequel le combustible $(Th, Pu)O_2$ prend la place du combustible UO_2 et le combustible $(Th, U)O_2$ celle du combustible MOX $((U, Pu)O_2)$. Ainsi le chapitre 6 compare les doses perçues par les travailleurs dans divers points du cycle dont notamment les plus

sensibles, à savoir certains transports des matières, et la fabrication du combustible. La comparaison étant faite entre le cycle actuel et ce cycle thorium hypothétique.

Pour plus de détails sur le cycle du combustible Français le lecteur peut se référer aux références [Pat02] et [Bro02].

1.3 Codes de calcul

1.4 Outils de l'étude : codes MURE et MCNP

En vue de remplir les objectifs de cette thèse il est nécessaire de disposer d'un certain nombre d'outils dont cette section a pour but de présenter.

Le code MCNP (Monte-Carlo N Particle) développé au laboratoire américain de Los Alamos, est un code de transport de particules (neutrons, électrons, photons) utilisant la méthode de Monte-Carlo. Ce code fait référence dans bon nombre d'applications : neutronique, radioprotection, imagerie médicale etc... C'est pourquoi, dans cette étude, il est utilisé aussi bien pour l'étude de la production d' ^{232}U en réacteur que pour l'aspect radioprotection dans l'aval du cycle. L'interfacage avec le code MURE est indispensable dans le premier cas, facilitateur de vie dans le second.

Il existe beaucoup de documentations concernant MCNP. Ainsi il ne sera présenté que brièvement.

1.4.1 MCNP

Le principe de la méthode de Monte-Carlo consiste, dans une géométrie définie par l'utilisateur à suivre l'histoire de chaque particule de son lieu de "naissance" (source, fission, effet photoélectrique ...) jusqu'à sa "mort" (capture, absorption, effet photoélectrique...). Concrètement l'utilisateur définit une géométrie et des matériaux, chaque matériau devra occuper une forme géométrique donnée appelée cellule. Il faut également définir la source de particules (types de particules : neutrons et/ou électrons et/ou photon, énergie, distribution, nombre). Une fois les cellules et la source définies, MCNP cherche dans les bases de données les sections efficaces d'interactions de la ou des particules avec les différents atomes des cellules. Pour chaque

cellule, MCNP calcule une section efficace macroscopique totale d'interaction

$$\Sigma_{tot}(E) = \sum_{\forall i} \rho_i \left(\sum_{\forall r} \sigma_i^r(E) \right)$$

avec ρ_i le nombre de noyaux i par unité de volume et σ_i^r section efficace microscopique d'interaction de la particule par la réaction r sur le noyau i . $\Sigma_{tot}(E)$ représente la probabilité par unité de longueur que la particule suivie interagisse dans le matériau, l'inverse de cette quantité est, $\lambda(E)$, le libre parcours moyen. La probabilité de parcourir un chemin de longueur l sans interagir, puis d'interagir en l est donnée par

$$p(l) = \frac{1}{\lambda} e^{-\frac{l}{\lambda}}$$

La fonction de répartition associée est $l(E) = -\lambda(E) \ln(1 - p)$ avec p variable aléatoire uniformément répartie sur $[0,1]$. Ainsi la distance à laquelle la particule interagit est choisie aléatoirement suivant cette loi de probabilité. Une fois le site de l'interaction défini on va déterminer le noyau et le type de réaction qui a lieu sur le site, de manière similaire au choix du site d'interaction. Suivant la réaction, la particule peut être "détruite" (absorption neutronique, effet photoélectrique, fuite hors de la géométrie...) diffusée (effet Compton, diffusions élastiques et inélastiques...) et peut créer de nouvelles particules (fissions, réaction $(n,2n)$ $(n,3n)$, effet photoélectrique...). Les caractéristiques (énergie et direction) des particules faisant suite aux réactions sont tirées au hasard selon des distributions de probabilités imposés par la nature des réactions en questions. La simulation s'arrête lorsque toutes les particules sont "détruites" ou perdues par fuites hors de la géométrie. Ce calcul de transport étant probabiliste il est nécessaire de simuler un nombre important de particules pour avoir foi dans les résultats. L'erreur statistique relative est proportionnelle à l'inverse de la racine carré du nombre de particules simulées.

Le transport des particules chargées (électrons) est géré différemment car un nombre important d'interactions distantes ont lieu. Le traitement par interaction ponctuelle est hors de portée pour les particules chargées car trop dispendieux en temps de calcul. La façon dont MCNP effectue leur transport est indiquée dans le chapitre 5.

1.4.1.1 Calcul du flux dans une cellule

Une des grandeurs indispensables au calcul des taux de réaction, et donc à l'évolution du combustible sous irradiation (voir section sur MURE), est le flux neutro-

nique dans la (les) cellule(s) évoluant(e)s. Le flux (densité volumique de neutrons ayant même vitesse, multipliée par cette vitesse), à une certaine énergie, est évalué par l'estimateur de longueur de trace (*Track length estimator*). Dans une cellule, un neutron d'énergie E parcourt une distance $l_i(E)$ sans interagir (cette distance dépend du tirage aléatoire précédemment expliqué), la somme des longueurs des parcours i de tous les neutrons d'énergie E divisée par le volume de la cellule V est le flux moyen de neutron d'énergie E présent dans la cellule : $\phi(E)$. On a 1.1 :

$$\phi(E) = \frac{\sum_i l_i(E)}{V} \quad (1.1)$$

1.4.1.2 Calcul du facteur de multiplication

MCNP peut être utilisé pour calculer le facteur de multiplication effectif d'un système donné (k_{eff}). Ce dernier est le rapport du nombre de neutrons entre deux générations successives, la fission étant ce qui sépare les générations. Le calcul du k_{eff} nécessite de connaître au mieux la distribution des sites de fissions dans la géométrie simulée. Ainsi le calcul, réalisé par cycle, est d'abord effectué à blanc. Ces cycles sont appelés cycles inactifs, c'est à dire que les valeurs de k_{eff} ainsi que tous les tallys ne sont pas enregistrés. À chaque cycle une bouffée de neutrons est transportée, et chaque point de l'espace où une fission a lieu est sauvegardé et fait office de source de neutrons pour le cycle suivant. Une fois que les neutrons ont balayés l'ensemble de la géométrie la source est convergée et les cycles peuvent devenir actifs. Le k_{eff} est, à ce moment, calculé à l'aide de trois estimateurs différents, la documentation de MCNP les expliquant en détails le lecteur intéressé peut s'y référer [Man]. Plusieurs cycles actifs sont nécessaires pour atteindre une statistique suffisante. Le nombre de cycles actifs et inactifs et de particules par cycle sont déterminés par l'utilisateur.

1.4.2 MURE

Le code MCNP effectue le transport statique des particules (électrons, photons, neutrons), c'est à dire que les matériaux dont il simule l'irradiation n'évoluent pas, par exemple la consommation des éléments fissiles, l'apparition des produits de fissions ne sont pas traitées. C'est pourquoi le code d'évolution MURE (Mcnp Utility for Reactor Evolution) a été développé par les chercheurs de l'IPN d'Orsay et du LPSC de Grenoble. Il s'agit d'une interface avec le code MCNP en langage C++ facilitant la définition de la géométrie du problème et permettant de traiter l'évolution de la matière sous

irradiation neutronique. Il est couplé depuis 2009 au code de thermo-hydraulique COBRA [Cap09]. **De plus le développement d'un nouveau module facilitant la définition des termes sources pour des calculs de radioprotection et permettant leurs calculs (spectres γ , neutron, α , β^-) fait parti intégrante de ce travail de thèse (cf. chapitre 5).**

1.4.2.1 L'évolution dans MURE

Simuler l'évolution dans le temps de la matière nucléaire sous irradiation nécessite la résolution des équations de Bateman pour chaque noyau du système en évolution. Les équations de Bateman sont des équations différentielles du premier ordre. La variation du nombre de noyaux d'un isotope i dans le système est égale à la somme des taux de productions de cet isotope par décroissance et par réaction nucléaire ôtée du taux de destruction par décroissance et réaction nucléaire. Soit N_i le nombre de noyaux de l'isotope i à une date t . On peut écrire 1.2 :

$$\frac{\partial N_i}{\partial t} = \underbrace{\sum_j \lambda_j^{j \rightarrow i} N_j + \sum_{j'} N_{j'} \langle \sigma_{j' \rightarrow i}^{j'} \rangle \langle \phi \rangle}_{\text{Production}} - \underbrace{\lambda_i N_i - N_i \sum_{\forall r} \langle \sigma_i^r \rangle \langle \phi \rangle}_{\text{Destruction}} \quad (1.2)$$

Où les rapports de branchements⁷ $R_{j \rightarrow i}$ et $R_{j' \rightarrow i}$ respectivement pour les décroissances et les réactions sont "cachés" dans la notation $j \rightarrow i$. Ce rapport de branchement vaut 1 à deux exceptions près. Pour les fissions, ce rapport de branchement est égal au rendement de fission. Pour les réactions amenant le noyau fils dans un état isomérique (*e.g* $^{242}\text{Am}^m$) un rapport de branchement isomérique moyen est calculé (cf. section 2.2.1 du chapitre 2.).

Le système d'équations différentielles couplées peut s'écrire sous forme matricielle comme une matrice carrée A de dimension nombre de noyaux, n . Les équations de Bateman 1.2 deviennent 1.3 :

$$\frac{d\overrightarrow{N(t)}}{dt} = A(t) \cdot \overrightarrow{N(t)} \quad (1.3)$$

Les sections efficaces $\langle \sigma \rangle$ et le flux $\langle \phi \rangle$ sont calculés de la façon suivante :

MCNP a la charge de calculer le flux, plus exactement il est demandé à MCNP la forme du spectre neutronique, $\psi(E)$, dans les différentes cellules évoluant. La

7. proportion de la décroissance de l'atome j qui l'amène sur i dans toutes les décroissances possible de l'atome j

définition énergétique de ce spectre est telle que le phénomène d'autoprotection⁸ est correctement pris en compte (découpage très fin dans la zone des résonances). À partir de $\psi(E)$ et des sections efficaces $\sigma(E)$ des bases de données, les sections efficaces moyennes sur le spectre neutronique sont calculées de la sorte (les sommes portant sur les groupes d'énergies g) :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\sum_g \psi(E) \cdot \sigma(E)}{\sum_g \psi(E)} \quad (1.4)$$

Cette méthode multigroupes permet de gagner en temps de calcul comparé à la méthode qui consiste à laisser MCNP calculer lui même les taux de réaction (normalisé à un neutron source). Cette dernière méthode ne réalise aucun découpage énergétique, les résultats sont donc plus précis [Bri10]. MCNP donne la valeur du flux pour un neutron source. Cependant l'intensité du flux dans la cellule $\langle \phi \rangle$ peut se déduire de la puissance thermique du système défini dans MURE. En effet la puissance P est reliée aux taux de fissions, eux mêmes liés à l'intensité du flux par la relation (où la somme porte sur les noyaux fissiles) :

$$P = \sum_f N_f \langle \sigma_f \rangle \epsilon_f \langle \phi \rangle \quad (1.5)$$

Avec N_f le nombre de noyaux fissiles f par cm^{-3} et ϵ_f l'énergie libérée par une fission du noyau f .

Les sections efficaces $\langle \sigma \rangle$ et le flux $\langle \phi \rangle$ dépendent de la géométrie et de la composition des différentes cellules (*ie* du vecteur N). Par conséquent plusieurs calculs (pas) MCNP sont nécessaires afin de prendre en compte l'évolution de ces grandeurs aux cours de l'irradiation. L'intégration par Runge Kutta 4 des équations de Bateman entre deux pas MCNP est réalisée avec $\langle \sigma \rangle$ et $\langle \phi \rangle$ constants. Le fichier d'entrée MCNP est mis à jour à chaque pas avec la composition issue de la résolution des équations de Bateman. Le calcul s'arrête au pas MCNP défini par l'utilisateur. Le principe itératif du calcul d'évolution dans MURE est résumé dans le schéma ci dessous :

Le lecteur intéressé par ce code de calcul peut se référer à la bibliographie (cf. [OAO⁺05], [FOS⁺05], [MS06] et [Cap09]) pour de plus amples informations. Le lecteur encore d'avantage intéressé par cette boîte à outils qu'est MURE peut se procurer les sources du programme et la documentation sur le site de la NEA (Agence pour l'Énergie Nucléaire) [web09].

8. Diminution du flux aux énergies des résonances des sections efficaces

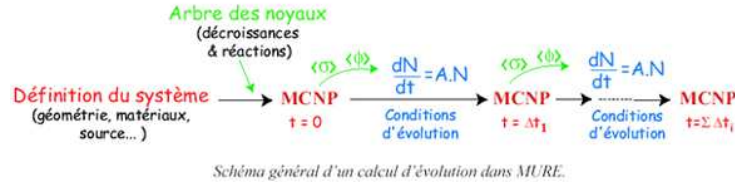


FIGURE 1.6 – Principe itératif du calcul d'évolution MURE

Conclusion

Le cycle Th/U présente de nombreux avantages (cf. section 1.1), dont le principal est une bonne régénération du noyau fissile en spectre thermique. Cependant, il présente quelques limitations, dont l'étude de l'une d'entre elles (^{232}U) fait l'objet de ce document (cf. section 1.1.4). Cette thèse se structure en deux parties. La première partie vise à déterminer les paramètres influençant la synthèse de ^{232}U en réacteur. Dans un premier temps, cette première partie se focalise sur la synthèse en réacteur à eau pressurisée pour différents combustibles du cycle actuel (U/Pu) et du cycle Th/U. Dans un second temps l'impact de la technologie de réacteur sur la synthèse de ^{232}U en combustibles thoriés est étudié par l'intermédiaire de comparaisons avec les technologies CANDU et RNR Sodium. Enfin, la deuxième partie de ce manuscrit a pour objet d'étudier les conséquences de l'introduction du thorium sur le cycle du combustible au niveau de la radioprotection. Pour se faire, la connaissance des termes sources (spectres γ , neutron, α , β^-) est indispensable. Ainsi le premier chapitre de cette seconde partie expose la façon dont ils sont calculés, leurs exactitudes étant démontrées par l'intermédiaire de différents benchmarks. Enfin le dernier chapitre présente différents calculs permettant de comparer, entre les matières du cycle thoriés et du cycle actuel, les débits de doses dans plusieurs points du cycle du combustible tels que la fabrication de la céramique nucléaire et le transport des combustibles usés.

Ce qu'il faut retenir

- Le cycle Th/U :
 - Avantages :
 - Bonne régénération du fissile en réacteur thermique
 - Production moindre d'actinides mineurs
 - Possibilité d'incinérer le plutonium
 - Flexibilité dans la gestion du cycle : pas de perte de fissile contrairement au Plutonium (disparition du ^{241}Pu)
 - Présence d' ^{232}U à l'issue de l'irradiation : argument anti-prolifération
 - Limites :
 - **Présence d' ^{232}U à l'issue de l'irradiation : contraintes de radioprotection sur l'aval du cycle**
 - Le vecteur thorium est dépourvu de fissile \rightarrow nécessité de disposer de stock de plutonium ou d'uranium enrichi
 - Complication au retraitement (à cause de la stabilité chimique du dioxyde de thorium)
 - Longue durée de vie du ^{233}Pa : Captures parasites sur le fissile en devenir (diminution de la puissance pour diminuer l'effet) et retard à la régénération.
 - Production de ^{231}Pa : Radiotoxicité à longs termes
- Objectifs de la thèse :
 - Déterminer les paramètres influençant la synthèse d' ^{232}U en réacteur à eau pressurisée, pour les combustibles du cycle actuel et du cycle du thorium
 - Estimer l'impact de la technologie de réacteur sur la production d' ^{232}U en combustible thorié par l'intermédiaire de comparaisons avec les technologies CANDU, REP et RNR-Na.
 - Développement et validation d'un code permettant le calcul des spectres γ , β^- , α , et neutron de la matière radioactive du cycle du combustible et facilitant la définition des termes sources pour les calculs de radioprotection.
 - Ces outils sont appliqués à des calculs de débits de dose : à la fabrication du combustible thoriés et au transport de combustibles usés thoriés comparative-ment aux combustibles actuels .

Première partie

Synthèse de l'Uranium 232 dans les systèmes nucléaires

Chapitre 2

Introduction

2.1 Méthodologie générale et cadre de l'étude

Cette première partie vise, par l'intermédiaire de calculs MURE et de différents outils spécialement développés (cf. 2.3 et 2.4), à quantifier la production d' ^{232}U pour différents combustibles dans différents systèmes nucléaires. Dans un premier temps, quelques points de la méthodologie ainsi que les différentes géométries de réacteurs sont définis. Les différentes voies amenant à la synthèse de l' ^{232}U sont présentées selon le type de combustible soumis à l'irradiation. Le second chapitre s'intéresse à la synthèse d' ^{232}U en réacteur à eau pressurisée chargé en combustible utilisé actuellement en France, à savoir : du dioxyde d'uranium enrichi (UO_2), du dioxyde d'uranium de retraitement enrichi (URTe) et des oxydes mixtes d'uranium appauvri et de plutonium (MOX). Le combustible UO_2 fait office de cas de référence, qui servira de point de comparaison pour l'introduction du thorium dans le cycle actuel. Les combustibles thoriés étudiés sont : un mélange d'oxyde de thorium et d'oxyde d' ^{233}U pur ($(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$), et enfin un mélange d'oxyde de plutonium et de thorium ($(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$). L'objectif étant, pour chaque combustible, d'identifier les différentes voies de production de cette isotope indésirable, et les paramètres influençant sa synthèse. Dans un troisième chapitre, l'impact, sur la production d' ^{232}U , de la technologie de réacteur employée est traité. Il s'agit de comparer la synthèse d' ^{232}U en REP avec deux systèmes intéressants vis à vis de la surgénération. Il s'agit donc du CANDU (CANadian Deuterium Uranium), du REP (Réacteur à eau pressurisée) et du RNR-Na (Réacteur à neutrons rapides refroidis au sodium) chargés en $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ ou $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$.

2.1.1 Calcul de la teneur initiale en noyaux fissiles

Dans un souci de simplification, de limitation du temps de calcul, de convergence des sources neutrons, et pour des raisons de difficultés d'accès à certaines données du coeur, les évolutions réalisées avec MURE sont faites pour une seule cellule élémentaire (un assemblage) à laquelle on applique des conditions de réflexions sur les surfaces externes. Ceci nécessite de connaître les fuites neutroniques afin de réaliser une correspondance entre le facteur de multiplication infini d'un assemblage (k_∞) et le facteur de multiplication effectif du système (k_{eff}). Cette équivalence coeur/-cellule permet de connaître le taux de combustion maximum atteignable pour une concentration donnée de noyaux fissiles et ce tout en prenant en compte le rechargement fractionné du réacteur (par quart, par tiers ...). Le combustible frais vient compenser la sous-criticité du combustible plus vieux.

Dans ces calculs d'évolutions assemblages, les fuites ainsi que les barres de contrôles et les captures sur les éléments de structures ne sont pas simulées. On peut écrire :

$$k_\infty^{coeur} = k_{eff} + fuites + capture\ barres\ et\ structures$$

Le calcul assemblage permet d'estimer le k_∞^{coeur} à partir du k_∞ d'un assemblage. En effet dans un coeur, du fait de la gestion par *batch*, les assemblages présents ont subi des durées d'irradiations différentes et ont une réactivité qui dépend de ce temps d'irradiation. En considérant que la réactivité des assemblages ne dépend que de leur temps de séjour on peut faire l'hypothèse que le k_∞^{coeur} à un instant t est la moyenne du k_∞ aux temps $t + i\frac{T}{N}$ ou N est le nombre de rechargements et T le temps d'un cycle complet (le temps entre l'entrée du combustible frais et sa sortie). On a pour un coeur à l'équilibre (*ie* hors démarrage) :

$$k_\infty^{coeur}(t) \approx \frac{1}{N} \sum_{i=0}^N k_\infty(t + \frac{iT}{N})$$

Les fuites de neutrons peuvent être estimées à l'aide d'un calcul coeur, les captures dans les barres de contrôles sont parfois accessibles dans la littérature et souvent de l'ordre de 1000 pcm. La figure 2.1 représente le k_∞ , le k_{seuil} ($= k_{eff}(= 1) + fuites + capture\ barres\ et\ structures = 1.04$) et le k_∞^{coeur} pour un réacteur de type REP UOx avec un rechargement par quart. Cette figure provient d'un calcul MURE.

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

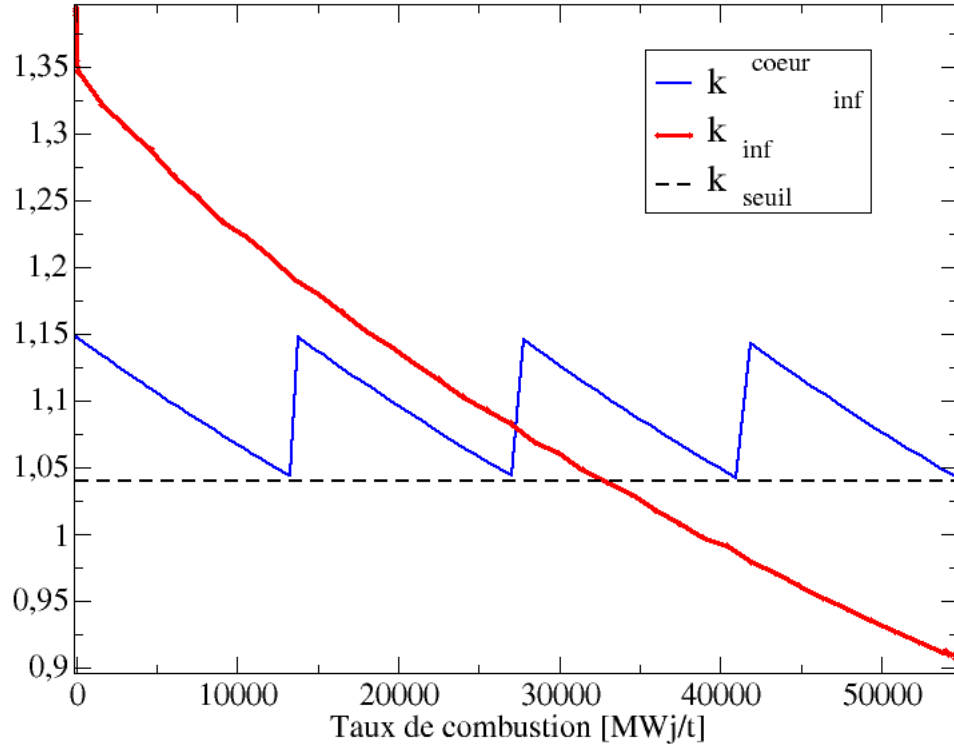


FIGURE 2.1 – k_{∞}^{coeur} , k_{∞} , et k_{seuil} d'un REP UOx (4.1% mol. d' ^{235}U). Taux de combustion* maximum : 55GWj/tMLi

Comme la gestion de la sur-criticité par dilution d'acide borique (pour le REP) n'est pas prise en compte dans le calcul assemblage le k_{∞} ne vaut k_{seuil} qu'à la fin de chaque *batch*. Il a été démontré dans la thèse de Perrine Guillemin que le bore n'a pas d'influence notable sur l'évolution de la composition du combustible. Cette méthodologie est utilisée notamment dans les références suivantes [NGB⁺12] [Gui09] [Sog12]. D'autre part, certaines valeurs de k_{seuil} (pour le REP et le CANDU) proviennent de calculs coeur réalisés dans cette même thèse [Gui09].

* Définition du taux de combustion :

Le taux de combustion est la quantité d'énergie thermique extraite lors de l'irradiation du combustible. Elle est normalisée par tonne de métal lourd initiale (*ie* l'oxygène des combustibles oxydes n'est pas compté dans la masse). Le taux de combustion BU (*Burn-up* en anglais) est lié au temps d'irradiation t_{ir} par :

$$t_{ir} = \frac{BU}{P_{th}} . tMLi$$

Avec P_{th} la puissance thermique du système considéré et $tMLi$ (tonne de métal lourd initial) la masse de métal lourd présent initialement dans le combustible.

2.1.2 Données nucléaires

Une simulation d'évolution du combustible nucléaire requiert la connaissance d'une grande quantité de données nucléaires. Ces données comprennent les sections efficaces, les rendements de fissions, les demi-vies et les rapports de branchement d'un nombre conséquent de noyaux. Ces données sont regroupées dans des bases de données évaluées. L'évaluation consiste à partir des bases de données expérimentales (EXFOR) et de différents modèles théoriques, valides dans certaines gammes d'énergie, à reconstituer un ensemble cohérent de données pour un vaste domaine d'énergie et pour presque toutes les réactions et pour un nombre important d'isotopes. Il est possible que certaines sections efficaces n'aient jamais été mesurées, dès lors l'évaluation se base sur des résultats de modèles. C'est par exemple le cas de certaines sections efficaces d'intérêt pour la synthèse d' ^{232}U (*eg* $^{232}\text{U}(n, \gamma)$). Les sections efficaces évaluées sont par la suite "*traitées*" par un programme de traitement (NJOY) qui permet, entre autres, de prendre en compte l'élargissement Doppler des résonances, donnant ainsi une section efficace par température. Ce programme convertit les sections efficaces dans un format lisible par MCNP.

Provenance des données nucléaires utilisées :

Pour toutes les simulations réacteurs, les sections efficaces sont, dans cette thèse, en priorité issues de la base de données américaine ENDF 7.1. Ce choix a été fait car cette base de données est la plus pénalisante vis à vis de la production d' ^{232}U (cf. section 3.1.6 et 3.3.4.1). Certains noyaux ne sont pas présents dans cette base mais présents dans d'autres (ils sont peu nombreux). La définition d'une *BasePriority* dans MURE permet de définir l'ordre de priorité. L'ordre est le suivant : ENDF 7.1

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

/ENDF 7.0 /JENDL 4.0/JEFF 3.1, si un noyau n'est pas présent dans la première, MURE cherche dans la suivante etc... Il arrive que pour certains noyaux aucune section efficace ne soit présente dans les bases précédemment cités, ces noyaux peuvent être produits mais ne sont pas détruits, leur inventaire est donc surestimé. Ceci dit ces noyaux sont souvent à durée de vie très courte, leur destruction par réaction est par conséquent négligeable. Ainsi, leur intérêt pour la neutronique et la radioprotection est insignifiant. Les rendements de fission proviennent de ENDF 7.1, l'utilisateur choisit l'énergie moyenne des neutrons : soit 0.025 eV pour un spectre thermique ou bien 500 keV pour un spectre rapide. Les rendements de fission à cette énergie de neutron sont alors extraits de la base. Les périodes radioactives et rapports de branchements sont issus de Nuclear data book et JEFF 3.0 [ea96] [R.B96].

2.1.3 Systèmes étudiés

Dans cette section, les différents systèmes simulés sont présentés. Ces systèmes ont été choisis pour leurs spectres neutroniques différents à savoir : le réacteur à uranium naturel modéré à l'eau lourde (CANDU) dont le spectre est très thermique, Le réacteur à eau pressurisé (REP) qui est le réacteur le plus utilisé à travers le monde. De plus un réacteur à neutrons rapides caloporté au sodium (RNR-Na) fait également l'objet de cette étude, puisqu'il est un des systèmes de GEN-IV les plus étudiés et bénéficiant du plus important retour d'expérience. Ces systèmes, présentant des spectres neutroniques variés, permettent ainsi d'étudier l'influence de la technologie de réacteurs sur les inventaires en ^{232}U . Une autre justification, et non des moindres, de l'étude de ces systèmes, est leurs caractéristiques intéressantes vis à vis de la surgénération [Gui09], [Bri10]. Pour chacun de ces systèmes, différents combustibles thoriés sont utilisés.

2.1.3.1 CANDU

Le CANDU pour *CANada Deuterium Uranium* est un réacteur conçu durant les années 50 et 60 par un partenariat de plusieurs compagnies dont l'AECL (*Atomic Energy of Canada Limited*) et la *Hydro-Electric Power Commission of Ontario*. Ce type de réacteur, qui a connu plusieurs évolutions, est utilisé au Canada et dans plusieurs autres pays : l'Inde, le Pakistan, la Corée du Sud, la Roumanie, la Chine et l'Argentine. Il y a actuellement 34 réacteurs CANDU en fonctionnement à travers le monde. Une des principales caractéristiques de ce type de réacteur est d'utiliser

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

de l'eau lourde comme modérateur (au moins 99.75 % massique de D_2O). Ce modérateur est moins efficace que l'eau légère pour ralentir les neutrons. En effet il faut en moyenne 15 diffusions sur un noyau d'hydrogène contre 20 sur le deutérium pour ralentir un neutron de 2 MeV à 1 eV. Ceci implique de disposer d'un volume d'eau plus important entre les éléments combustibles comparé à un réacteur à eau légère pour avoir la même efficacité de modération. En revanche le deutérium absorbe beaucoup moins de neutrons que l'hydrogène si bien que le bilan neutronique est assez favorable pour utiliser de l'uranium naturel comme combustible, ceci est un avantage certain pour cette filière puisqu'elle ne nécessite pas d'étape d'enrichissement, opération lourde et coûteuse.

Les aiguilles combustibles sont disposées en faisceaux et constituent un élément combustible (*Bundle* en anglais). Plusieurs éléments combustibles sont disposés les uns derrière les autres dans un tube appelé tube de force où circule le caloporteur (eau lourde). Ces tubes de forces sont agencés horizontalement dans des tubes solidaires de la cuve du réacteur (appelée calandre) elle même remplie d'un grand volume d'eau lourde qui fait office de modérateur (cf. figure 2.2). Du dioxyde de carbone isole thermiquement le tube de la calandre et le tube de force(cf. figure 2.2) .

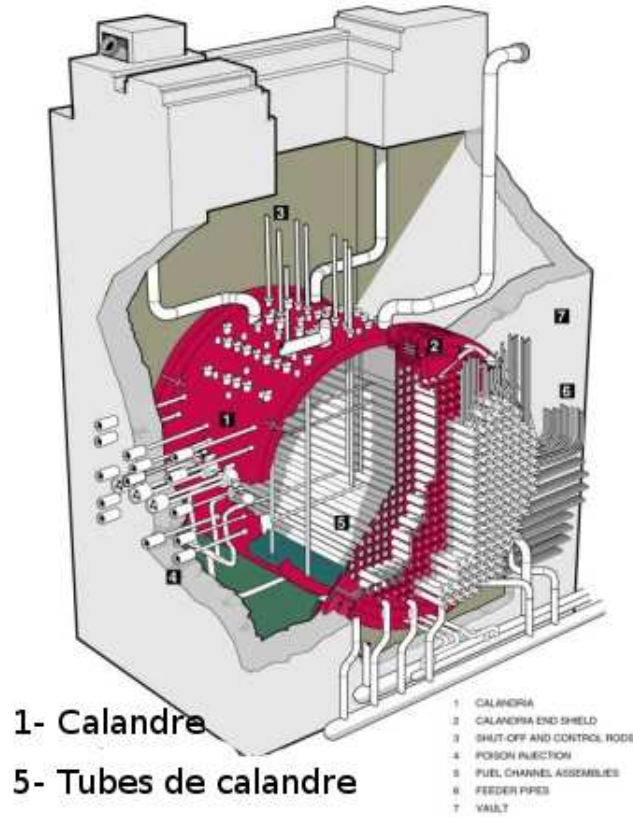


FIGURE 2.2

Les éléments combustibles peuvent être insérés, déplacés, et extraits des tubes de forces, et ce sans que le réacteur ne soit à l'arrêt. Entre 6 et 10 éléments combustibles sont entrés et sortis chaque jour, un élément est déplacé 12 fois au cours de son irradiation. Ainsi on évite les arrêts annuels, nécessaires sur les autres types de réacteurs pour uniformiser l'usure du combustible. Cette gestion en ligne du combustible permet d'éviter l'utilisation de poisons neutroniques nécessaires à compenser l'excès de réactivité en début de cycle et ainsi de réaliser une économie de neutrons. Ces neutrons économisés sont la raison d'une meilleure régénération du combustible qu'en REP. En revanche, les taux de combustion accessibles avec ce type de réacteurs sont courts (environ 8 GWj/tMLi), du fait de la faible proportion du noyau fissile dans l'uranium naturel (0.7% mol.) et ce malgré le rechargement en ligne qui permet de limiter le nombre de produits de fission présents en coeur et donc les captures neutroniques sur ces derniers. Le tableau 2.1 présente les principales caractéristiques

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

d'un assemblage CANDU-6 qui a été simulé à l'aide du code MURE durant cette étude.

Tableau 2.1 – Caractéristiques de l'assemblage CANDU-6 [Gui09]

Pas élémentaire	28.575 cm
Rayon du tube de calandre	6.59 cm
Rayon de gaz inerte	6.45 cm
Rayon externe du tube de force	5.60 cm
Rayon interne du tube de force	5.17 cm
Rayon des gaines	0.654 cm
Rayons des crayons combustibles	0.612 cm

Étant donné que les crayons les plus externes de l'assemblage voient un flux plus thermique que les crayons centraux il faut éviter de définir une seule cellule pour tous les crayons. Ainsi les crayons sont regroupés en 3 couronnes (cf. figure 2.3) [NGB⁺12]. Des conditions miroirs ont été appliquées aux surfaces externes de la cellule élémentaire illustrée par la figure 2.3. Le k_{seuil} défini en 2.1.1 a été estimé dans la référence [Gui09] et vaut 1.05. Pour chaque combustible, la teneur initiale sera telle que le taux de combustion maximum atteignable soit le même que pour l'uranium naturel soit : 7600 $MWj/tMLi$.

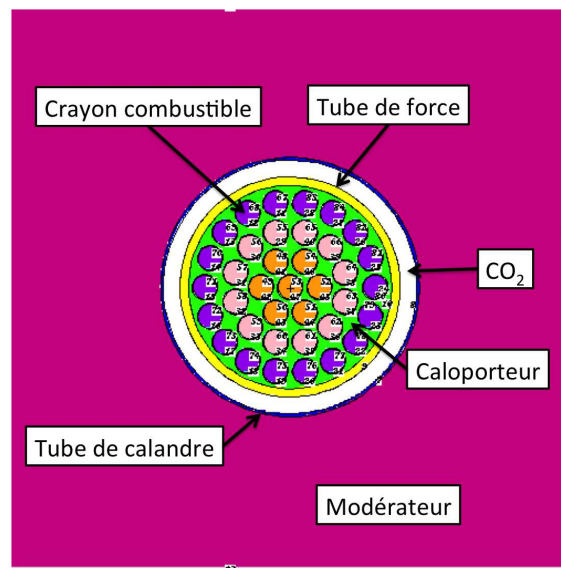


FIGURE 2.3 – Coupe radiale de l'assemblage CANDU simulé

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

2.1.3.2 REP

Le réacteur à eau pressurisée est le plus répandu à travers le monde, cette technologie représente les 2/3 tiers du parc mondial et l'intégralité du parc français. Un coeur de REP est constitué d'un grand nombre de longs tubes (~ 4 m) de faible diamètre (~ 1 cm) dans lesquels sont empilés des pastilles d'oxyde combustible. Les crayons sont regroupés en assemblages maintenus ensemble par des grilles. Il y a 264 crayons par assemblages et de 150 à 200 assemblages dans le coeur (selon la puissance du réacteur). Le tout baigne dans de l'eau sous pression (155 bar) qui circule de façon forcée dans ces assemblages. L'eau joue le rôle de modérateur des neutrons, les crayons étant espacés de telle sorte qu'un neutron produit par fission dans un crayon se thermalise avant de pénétrer dans un crayon voisin. Le rechargement du coeur s'effectue par quart ou par tiers, Le combustible réside dans le réacteur quatre ou trois fois la durée d'une campagne, une campagne varie de 12 à 18 mois selon le réacteur. Le combustible frais ajouté à chaque nouvelle campagne induit un excès de réactivité qu'il convient de compenser. Ceci est réalisé par l'ajout d'un poison neutronique dans l'eau et/ou dans le combustible. On dissout de l'acide borique dans l'eau dont la concentration est réduite, par dilution, au fur et à mesure que le combustible s'use. Un poison neutronique consommable (oxyde de gadolinium) peut être dilué dans un certain nombre de crayons combustibles, à force de captures neutroniques le gadolinium est détruit. Cette option est mise en place lorsque l'on souhaite atteindre des taux de combustion plus importants. En effet la concentration en acide borique est, pour des raisons de sûreté, limité à une certaine valeur, l'appoint d'antiréactivité est, par conséquent, apporté par ce poison consommable solide.

La puissance du réacteur est pilotée par l'introduction de crayons constitués d'un absorbant neutronique (du carbure de bore). Le flux de neutrons étant maximum au centre du coeur, on diminue la puissance en rapprochant les crayons absorbants de ce centre.

L'assemblage REP modélisé ici est celui employé dans les réacteurs REP-N4 (données d'assemblage provenant de la référence [Gui09]). Ce modèle de 1450 MWe est le plus récent en fonctionnement en France. Le coeur est constitué de 205 assemblages de 4.3 m de long. Chaque assemblage est constitué d'un réseau de 17×17 cellules comprenant 264 crayons combustibles, de 24 tubes guides pouvant accueillir les barres d'absorbantes en B_4C . Dans cette étude les crayons absorbants, l'acide borique, les grilles et les poisons consommables ne sont pas pris en compte. Les tem-

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

pératures dans le combustible, dans les gaines et dans le caloporteur sont fixées et uniformes. Le tableau 2.2 donne les caractéristiques géométriques de l'assemblage. La gaine en Zircaloy-4 est à une température de 600 K et à une densité de 6.5 g.cm^{-3} , la température du combustible est de 900 K quelque soit ce combustible. Le caloporteur est à 600 K avec une densité de 0.71 g.cm^{-3} . La teneur en noyaux fissiles est telle que le taux de combustion maximum, avec une gestion du rechargement par quart, soit de 55 GWj/tMLi. La méthode permettant de calculer le taux de combustion maximum atteignable est définie dans la section 2.1.1. Les réacteurs du palier N4 sont exploités en gestion par quart mais évolue vers une gestion par tiers[ePP08] . Afin d'éviter le problème de la convergence de la source neutron avec MCNP, l'assemblage est simulé sur un dixième de sa hauteur avec des conditions de réflexions sur les surfaces externes. Le k_{seuil} défini en 2.1.1 a été estimé dans la référence [Gui09] et vaut 1.04. La statistique utilisée est de 5000 neutrons par cycle avec 10 cycles inactifs et 40 cycles actifs permettant d'atteindre une erreur statistique convenable (cf. section 3.1.6) sur la grandeur d'intérêt (quantité d' ^{232}U en fin d'irradiation).

Tableau 2.2 – Caractéristiques de l'assemblage REP-N4

Pas de l'assemblage	21.61 cm
Pas d'une cellule	1.262 cm
Rayon du crayon	0.475 cm
Rayon de la pastille	0.418
Hauteur total	427 cm
Puissance de l'assemblage	20.73 MW

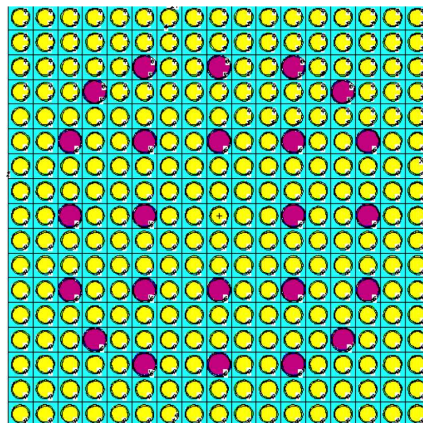


FIGURE 2.4 – Coupe radiale de l'assemblage REP simulé

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

2.1.3.3 RNR-Na

A la suite de la crise de 1970, des tensions sur le cours de l'uranium ont entraîné certains pays à envisager le recours aux réacteurs à neutron rapides surgénérateurs en prévision d'une pénurie annoncée d'uranium. C'est dans ce contexte que la France construisit un prototype (Rapsodie en 1963), un démonstrateur (Phénix en 1979) et une centrale (Superphénix en 1985) tous refroidis au sodium. La pénurie d'uranium se faisant attendre et certaines complications politiques et techniques aidant, cette filière prit fin en France en 1997. Cependant un prototype français de RNR-Na de quatrième génération (baptisé ASTRID) est en développement.

La grande différence entre un réacteur à neutrons rapides et un réacteur thermique est l'absence de modérateur. Le fluide transportant la chaleur est choisi pour ses propriétés thermiques (capacité calorifique, point de fusion ...) et son faible impact sur le ralentissement des neutrons. Ainsi les neutrons présentent un spectre plus dur dépourvu de bosse thermique. Étant donné que la probabilité d'induire une fission pour une absorption dans le combustible est plus faible pour des neutrons rapides, il est nécessaire d'augmenter la proportion de noyaux fissiles dans le combustible et le flux comparé à un réacteur à eau. Parce que la section efficace de fission est plus faible qu'en REP le flux doit être supérieur à puissance donnée. A ces énergies de neutrons, le nombre moyen de neutrons par fissions ($\bar{\nu}$) est plus grand qu'en spectre thermique, de même que le rapport de la section efficace de capture sur la section efficace de fission du noyau fissile est plus faible $\alpha = \frac{\sigma_{capt}}{\sigma_{fission}}$. Ainsi le nombre de neutrons disponibles ($N_d = \bar{\nu} - 2(1 + \alpha)$) pour régénérer le noyau fissile est plus grand qu'en spectre thermique et suffisant pour la sur-génération et/ou l'incinération d'actinides mineurs. Les principaux désavantages de cette filière sont la réactivité chimique du sodium avec l'eau et l'air, un coefficient de vide positif pour certaines configurations de forte puissance et une manutention du combustible plus difficile (le sodium est opaque). Au contact de l'eau le sodium donne de la soude et de l'hydrogène, c'est pourquoi un échangeur de chaleur sodium-sodium est intercalé entre le circuit sodium-eau afin d'éviter la présence de soude et d'hydrogène dans le cœur. Ceci réduit le rendement thermodynamique mais ce dernier reste tout de même supérieur à celui d'un REP (40 % contre 33%) puisque le sodium est à une température plus importante que l'eau du REP.

Le réacteur étudié ici est le SFR V0 du CEA [Bri10], d'une puissance thermique de 3600 MWth soit en moyenne 8.39MWth par assemblage. Le tableau 2.3 résume les principales caractéristiques géométriques de l'assemblage et le tableau 2.4 donne les

2.1. MÉTHODOLOGIE GÉNÉRALE ET CADRE DE L'ÉTUDE

températures et densités des matériaux utilisés. La simulation est effectuée pour un dixième d'assemblage avec des conditions de réflexions sur les surfaces externes (cf. figure 2.5).

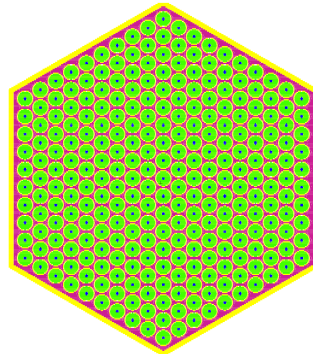


FIGURE 2.5 – Coupe radiale de l'assemblage RNR-Na simulé

Tableau 2.3 – Caractéristiques d'un assemblage RNR-Na

Aiguille	
Rayon externe de la gaine	0.54 cm
Rayon interne de la gaine	0.49 cm
Rayon de la pastille	0.48 cm
Rayon du trou central	0.1 cm
Assemblage	
Nombre d'aiguilles	271
Pas de l'assemblage	20.67 cm
Épaisseur paroi	0.38 mm
Hauteur fissile	1 m

Tableau 2.4 – Températures et densités des constituants de l'assemblage RNR-Na

Éléments	Matériaux	Températures (K)	Densités($g.cm^{-3}$)
Combustible	Variable	1500	Variable
Gaine et structures	Acier	740	7.76
Caloporteur	Na	740	0.84
Espace crayon-gaine	vide		
Trou central	vide		

2.2. VOIES DE PRODUCTION DE ^{232}U

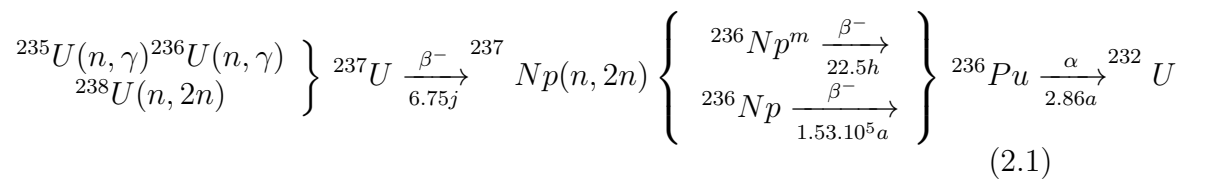
Détermination du k_{seuil} En général dans un RNR-Na, le taux de combustion maximum n'est pas fixé par l'empoisonnement du coeur et donc la teneur initiale en noyaux fissiles puisque le coeur peut rester critique longtemps du fait de l'iso voir de la sur-génération. Ainsi le taux de combustion est limité par la tenue des gaines à l'irradiation, fixant la limite du taux de combustion à 100 GWj/tMLi . Cependant il faut une teneur minimale en noyaux fissiles pour que le coeur soit critique au démarrage et durant les quelques mois qui suivent (combustibles ThPu). En effet pour les combustibles ThPu le k_{∞} chute avant de remonter du fait du retard induit par la durée de vie du ^{233}Pa sur la production de ^{233}U . Ainsi la teneur en noyaux fissiles est déterminée de telle sorte que $k_{\infty} \geq k_{seuil}$ durant les premiers mois d'irradiation. Pour les combustibles non régénérateurs (UO_2 , ThU) la teneur en élément fissile est déterminée de façon à ce que le combustible reste critique sur 100GWj/tMLi en considérant un rechargement par quart en utilisant la méthode définie en 2.1.1. Afin d'estimer le k_{seuil} , défini en 2.1.1, un calcul coeur simplifié a été entrepris pour estimer le niveau de fuites de neutrons. Ce coeur hexagonal est constitué de 430 assemblages tous identiques ayant des pastilles de même composition (du MOX, 12% de Plutonium). Ces assemblages sont surplombés d'un plénum en sodium et entourés d'un réflecteur en acier. Le plénum mesure 30 cm de haut le total mesure 2.7 m. Les barres de contrôles ne sont pas simulées.

Par la suite un dixième d'assemblage avec conditions de réflexions a été simulé (pastilles au MOX 12% de Pu) afin de comparer le k_{eff} du coeur au k_{∞} de l'assemblage. On trouve $k_{eff} = 0.97$ et $k_{\infty} = 1.05$, on a donc un $k_{seuil} = 1.08 + \text{Barres}$, en prenant 2000 pcm d'anti-réactivité pour les barres de contrôles on a $k_{seuil} = 1.1$.

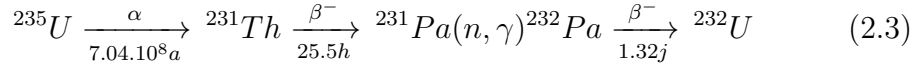
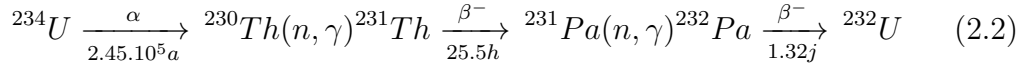
2.2 Voies de production de ^{232}U

On peut d'ores et déjà identifier les voies importantes pour chaque type de combustible étudié :

1. UOx , U enrichi provenant d'uranium naturel :



2.2. VOIES DE PRODUCTION DE L' ^{232}U



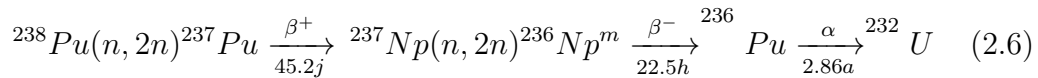
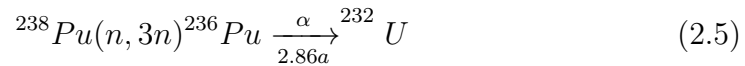
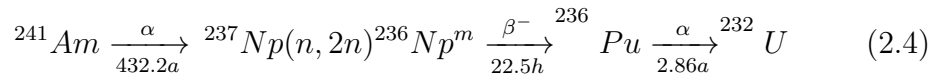
La sous section suivante 2.2.1 explique plus en détails la voie (2.1). Les voies (2.2) et (2.3) font intervenir des isotopes du thorium ainsi que le ^{231}Pa qui sont également produits lors de la décroissance de l'uranium naturel. Si le ^{231}Th est quasi-instantanément à l'équilibre avec l' ^{235}U en revanche le ^{231}Pa met $3.5.10^5$ ans à l'être et le ^{230}Th atteint l'équilibre avec l' ^{234}U en environ $5.8.10^5$ ans si bien que l'inventaire en ^{232}U dépend du temps écoulé entre la séparation chimique de l'uranium et la mise en réacteur. La figure (2.6) montre l'évolution de la concentration en ^{230}Th et en ^{231}Pa après séparation.

2. UOx , U enrichi provenant d'uranium de retraitement :

Les mêmes réactions que précédemment sont impliquées, cependant il faut se rappeler que l'uranium de retraitement contient, entre autres, de l' ^{236}U , ce qui "raccourci" d'une réaction la voie (2.1) et permet la synthèse du ^{237}Np en tout début d'irradiation.

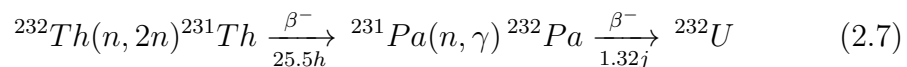
3. MOX :

En plus des chemins décrits précédemment viennent s'ajouter des voies liées à la présence de plutonium :



Le vieillissement du vecteur plutonium avant l'irradiation, de par l'apparition du ^{237}Np par décroissance de l' ^{241}Am , aura une influence sur la production d'uranium 232.

4. ThPu :



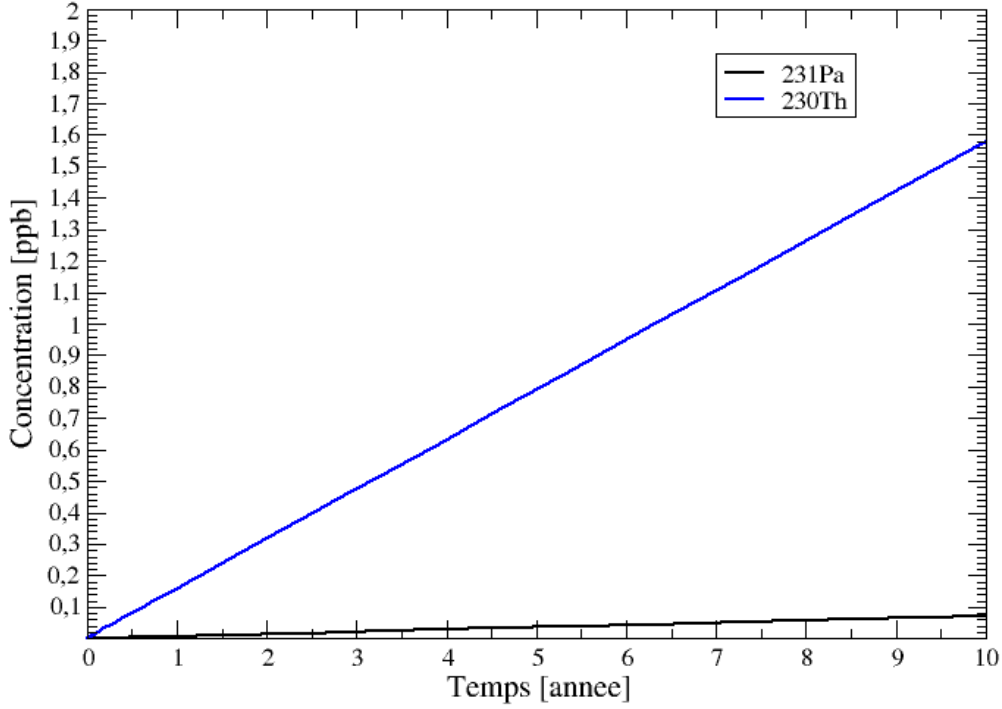
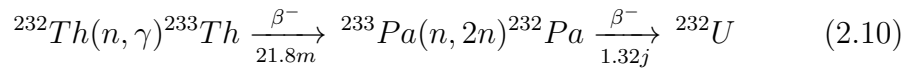
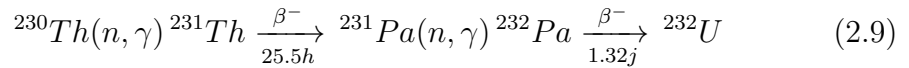
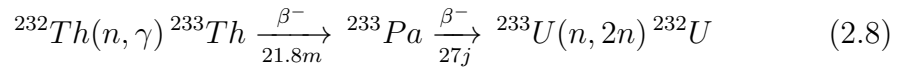


FIGURE 2.6 – Proportion de ^{230}Th et de ^{231}Pa dans l'uranium naturel au cours du temps après séparation chimique



L'importance de la voie 2.9 dépend du "type" de thorium utilisé. En effet le thorium est bien souvent mêlé à l'uranium dans le minerai. De ce fait on peut observer la présence de ^{230}Th provenant de $^{234}\text{U} \xrightarrow[2.45 \cdot 10^5 a]{\alpha} ^{230}\text{Th}$ dans le vecteur Thorium. Par conséquent la proportion d'uranium dans le minerai aura une influence sur l'inventaire d'uranium 232.

5. Th^{233}U :

Les voies sont identiques aux précédentes à la nuance près que la réaction

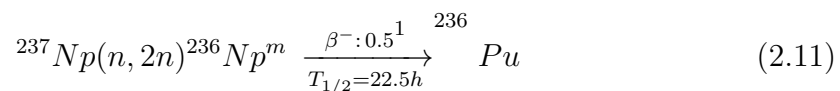
2.2. VOIES DE PRODUCTION DE ^{232}U

$^{233}\text{U}(n, 2n)^{232}\text{U}$ a lieu dès le début de l'irradiation.

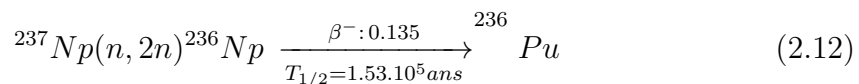
La part de chaque voie dans la production d'uranium 232 sera présentée dans les deux chapitres suivants

2.2.1 Synthèse du ^{236}Pu

Comme explicité à la sous section précédente une des voies possibles qui amène à la synthèse de l'uranium 232 passe par la décroissance α du ^{236}Pu . Le ^{236}Pu est principalement produit par les réactions suivantes :



et



La réaction (2.11) met en jeu la production d'un état isomérique du ^{236}Np or le code MURE ne prenait pas en compte la production d'isomère par réaction à l'exception de $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}^m$. Une méthode générale prenant en compte ce type de réaction a été implémentée dans MURE. La section efficace de la réaction $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}^m$ notée σ^m est calculée comme $\sigma^m(E) = \text{IBR}(E) \cdot \sigma(E)$ où $\sigma(E)$ est la section efficace de la réaction $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ et $\text{IBR}(E)$ le rapport de branchement isomérique. Le $\text{IBR}(E)$ est moyenné sur le spectre neutronique selon l'équation suivante et pris en compte lors de la création de la liste des réactions au début de la simulation d'évolution MURE.

$$\overline{\text{IBR}} = \frac{\int \sigma(E) \cdot \Phi(E) \cdot \text{IBR}(E) \cdot dE}{\int \sigma(E) \Phi(E) \cdot dE} \quad (2.13)$$

Le $\overline{\text{IBR}}$ vaut 0.8 et ce quelque soit le spectre neutronique puisque cette réaction possède un seuil d'environ 6.6 MeV, l'intégrale de l'équation (2.13) porte donc sur la queue de fission du spectre, identique à tous² les systèmes nucléaires. Un $\overline{\text{IBR}}$ de 0.8 signifie que 80% des réactions (n,2n) sur le ^{237}Np produisent le $^{236}\text{Np}^m$.

La plus courte demi-vie, le plus grand rapport de branchement β^- du $^{236}\text{Np}^m$ par rapport au ^{236}Np ainsi qu'un $\overline{\text{IBR}}$ de 0.8 permettent d'affirmer que la réaction (2.11) sera la plus importante des deux. La figure 2.7 montre l'évolution de l'inventaire en ^{236}Pu et en ^{232}U au cours de l'irradiation, dans un REP, d'un combustible UOx dans

le cas où la réaction (2.11) est prise en compte et dans le cas où elle ne l'est pas. On constate que lorsque la réaction est prise en compte (courbes notées meta) la production d' ^{232}U en fin d'irradiation est environ trois fois supérieure que lorsqu'elle ne l'est pas, et la production de ^{236}Pu est 4000 fois supérieure, le lecteur peut donc apprécier l'importance de cette réaction pour ce type de combustible. Notons ici que la quantité d' ^{232}U est liée à la décroissance du ^{236}Pu de demie vie 2.86 ans, ainsi la quantité d' ^{232}U est susceptible d'augmenter après la fin de l'irradiation.

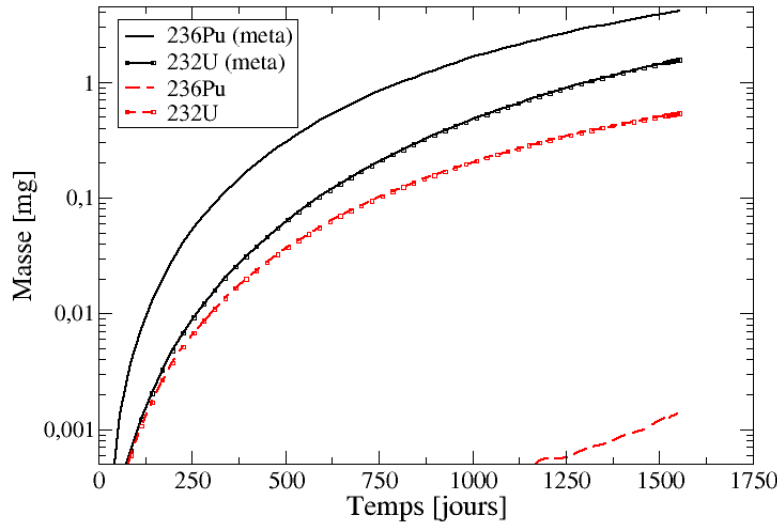


FIGURE 2.7 – Influence de la réaction $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}^m$ sur la production d'uranium 232 en REP UOx.

2.2.2 Destruction du $^{236}\text{Np}^m$

Aucune section efficace concernant les réactions sur le $^{236}\text{Np}^m$ n'est disponible dans les bases de données évaluées (JEFF, ENDF etc...), et seulement deux mesures sont présentes dans EXFOR (réaction (n,f) pour un spectre thermique mesurée en 1984 et 1986). Le $^{236}\text{Np}^m$ n'est donc pas détruit par réactions nucléaires par conséquent l'inventaire du $^{236}\text{Np}^m$ sera surestimé. Étant donnée la demi-vie de 22.5 h du $^{236}\text{Np}^m$ cette surestimation sera relativement faible. En effet en prenant une section efficace d'absorption de 100 barns un flux de $10^{14} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ la destruction de cet isotope par réaction ne représente qu'un millième de celle par

décroissance : $\lambda_{236} N_{p^m} \gg \sigma_{236} N_{p^m}(n, abs) \phi$

2.3 Solution adjointe des équations de Bateman

Les études d'évolution des réacteurs sont réalisées par résolution numérique des équations de Bateman (cf. equation 1.2). On peut associer à cette équation son équation adjointe au sens mathématique. Cette pratique est utilisée dans la théorie des perturbations pour l'analyse des sensibilités à différents paramètres. ([Bid05], [Kha10], [Wil86]). Cette équation adjointe est associée à une observable particulière qui représente souvent une quantité isotopique en fin de cycle. Notons N_i l'isotope d'intérêt. L'équation adjointe de l'équation de Bateman est défini par l'expression 2.14, [Wil86].

$$\begin{cases} \frac{dN^+}{dt} = A^+ N^+ \\ N_j^+(t = T_f) = 1. \delta(i, j) \end{cases} \quad (2.14)$$

Où N^+ représente le vecteur adjoint et A^+ l'opérateur adjoint de l'opérateur de Bateman. Cet opérateur adjoint est en fait définie par la matrice transposée de l'opérateur de Bateman. T_f représente le temps final de l'irradiation et $\delta(i, j)$ vaut 1 si $i = j$ et 0 sinon. La condition initiale de l'équation différentielle adjointe est en fait une condition finale. L'équation 2.14 peut se réécrire comme 2.15

$$\begin{cases} \frac{-dN^+}{dt} = A N^+ \\ N_j^+(t = T_f) = 1. \delta(i, j) \end{cases} \quad (2.15)$$

Pour résoudre cette équation différentielle, il suffit de partir de la condition finale et de remonter le temps par méthode Runge-Kutta, exactement de la même manière que via la résolution directe. L'intérêt de cette résolution réside dans la signification du vecteur adjoint N^+ . La composante j de ce vecteur à un instant t représente la probabilité que ce noyau j soit devenu le noyau d'intérêt (le noyau i) à la fin de l'irradiation. Ce vecteur est couramment appelé le vecteur importance et il est utilisé dans la théorie des perturbations pour calculer les sensibilités aux données nucléaires des systèmes en évolution. Connaissant ce vecteur importance, il est alors possible de calculer directement l'effet de perturbations relativement limité sur la production de tel ou tel isotope. C'est ce que l'on tâchera de mettre en oeuvre dans le chapitre suivant.

1. Rapport de Branchement β^-
2. A l'exception des ADS

2.4. DÉTERMINATION DU NOMBRE DE NOYAUX PRODUITS PAR UNE VOIE DE RÉACTION

Cette méthode, appelée par la suite méthode N^+ permet de :

- Calculer la production d' ^{232}U liée à une perturbation proche de la situation de référence (*e.g* production supplémentaire d' ^{232}U liée à la présence d'impuretés)
- Déterminer, pour chaque isotope présent initialement, la quantité de noyau qui deviendra de l' ^{232}U à l'issue de l'irradiation.

2.4 Détermination du nombre de noyaux produits par une voie de réaction

En vue de connaître les différents mécanismes amenant à la synthèse d' ^{232}U il est intéressant de savoir quels chemins de réactions et de décroissances sont empruntés et dans quelles proportions. Ces informations peuvent également être utiles pour donner des indications quant aux sections efficaces à déterminer avec le plus de précisions.

On cherche à savoir combien de noyaux d' ^{232}U sont produits par la voie V pour un combustible, un temps d'irradiation et un système nucléaire donné. Pour répondre à cette question un calcul d'évolution MURE classique est réalisé. A l'issue de ce calcul les sections efficaces et le flux moyen au cours du temps sont accessibles. Finalement on "rejoue" la simulation en éteignant toutes les réactions à l'exception des réactions qui ont lieu dans la voie d'intérêt. C'est à dire que l'arbre des noyaux est créé en supprimant tous les liens de filiations entre noyaux à l'exception de ceux de la voie considérée puis les équations de Bateman sont résolues à l'aide des sections efficaces et du flux calculé par MURE initialement. On obtient alors le nombre de noyaux d' ^{232}U créé par cette voie. Il faut bien noter que le calcul MURE n'est réalisé qu'une seule fois (avec toutes les réactions et décroissances) et que l'on se sert des sections efficaces et du flux issus de ce calcul pour résoudre les équations de Bateman avec un arbre des noyaux qui ne contient que la voie d'intérêt. Ce calcul d'évolution est réalisé en dehors de MURE par un code développé pour l'occasion.

Cette méthode, appelée par la suite : méthode voie, permet de :

- Calculer voie par voie la production d' ^{232}U .

2.4. DÉTERMINATION DU NOMBRE DE NOYAUX PRODUITS PAR UNE VOIE DE RÉACTION

Chapitre 3

Synthèse de l'uranium 232 en REP

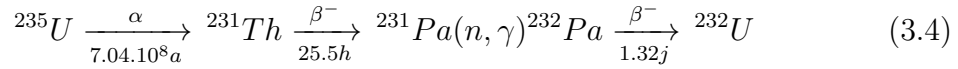
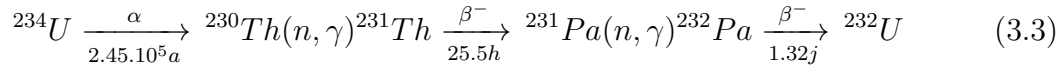
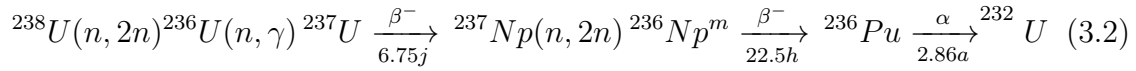
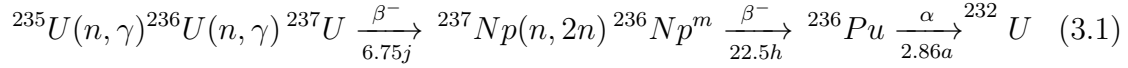
Lors des différentes comparaisons de l'étude, plusieurs normalisations de la quantité d' ^{232}U sont utilisées :

- En unité de masse par unité d'énergie électrique produite : Ce qui permet d'estimer les quantités d' ^{232}U présentes dans le cycle. L'unité d'énergie est le GWe.an (Giga Watt électrique an) c'est l'ordre de grandeur de la production électrique produite en une année par un réacteur (Rendement thermodynamique : 33% ; facteur de charge 85 %) .
- En unité de masse par tonne de métal lourd initial, au taux de combustion maximal atteignable : Ce qui est relatif à la problématique des débits de doses du transport des combustible utilisé.
- En unité de masse par tonne de métal lourd initial pour un taux de combustion fixé (pas forcément le taux maximum atteignable) : Ce qui permet de comprendre la physique mise en jeu.
- En proportion molaire d' ^{232}U dans le vecteur uranium : Ce qui est relatif à la problématique de fabrication de nouveau combustible à partir d'uranium retraité.

Dans un premier temps, est étudiée la production d' ^{232}U dans le cas de référence : le combustible UO_2 .

3.1 Combustible UO_2

Les principales voies amenant à la synthèse de l' ^{232}U lors de l'irradiation d'un combustible UO_2 enrichi sont les suivantes :



L'enrichissement augmente la proportion de l' ^{235}U et de l' ^{234}U . La variation de la teneur initiale des précurseurs a un effet sur la quantité d' ^{232}U produite en fin d'irradiation. L' ^{234}U et l' ^{235}U décroissent respectivement en ^{230}Th et en ^{231}Th tous deux précurseurs de l' ^{232}U selon les voies 3.3 et 3.4. De ce fait le temps entre la purification chimique du minerai d'uranium et la mise en réacteur du combustible augmente la quantité du ^{230}Th et du ^{231}Pa (cf. figure 2.6). Ainsi en premier lieu sera étudiée la production d' ^{232}U en fonction de l'enrichissement puis la production d' ^{232}U en fonction du temps séparant la purification de l'irradiation.

3.1.1 Influence de la teneur en noyaux fissiles

Afin de mettre en évidence l'influence de la teneur en noyaux fissiles sur la production d' ^{232}U trois évolutions ont été réalisées pour différents enrichissements en uranium 235. Le tableau 3.1 présente les vecteurs uranium utilisés lors de ces simulations.

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.1 – Isotopies des vecteurs Uranium et taux de combustion maximum atteignable

Isotopes	% mol.	% mol.	%mol
234	0.038	0.062	0.076
235	3.0	4.3	5.0
238	96.962	95.641	94.924
Taux de combustion maximum ($GW_j/tMLi$)	36	55	65

Le tableau 3.2 donne la production d'uranium 232 en $mg/tMLi$ en fin d'irradiation pour différents taux de combustion. Les inventaires donnés dans ce tableau considèrent que la totalité du ^{232}Pa a déchu en ^{232}U . Ce tableau indique que plus le combustible est enrichi plus la quantité de $^{232}U + ^{236}Pu$ augmente. Cependant cette augmentation est plutôt faible comparée à celle induite par l'augmentation du taux de combustion. Si la quantité de ^{232}U augmente avec l'enrichissement en revanche celle de ^{236}Pu diminue (cf. tableau 3.2). Il en résulte que la somme $^{232}U + ^{236}Pu$ augmente légèrement. Ainsi l'explication triviale qui consisterait à dire que plus les précurseurs de l' ^{232}U sont présents dans le combustible frais plus la production de ce dernier est grande nécessite d'être nuancée. Un combustible plus enrichi produit plus d' ^{232}U mais moins de ^{236}Pu pour un taux de combustion donné.

Tableau 3.2 – Production d' $^{232}U + ^{236}Pu$ ($mg/tMLi$) en REP UOx

Taux de combustion maximum ($GW_j/tMLi$)	36	55	65
% mol. ^{235}U			
3	1.88 (0.505)*	-	-
4.3	1.89 (0.529)	4.99 (1.76)	-
5	1.94 (0.636)	5.20 (1.94)	7.21 (2.81)

(*) : dont ^{232}U

La production d' $^{232}U (+ ^{236}Pu)$ par unité d'énergie électrique produite, augmente avec le taux de combustion maximum atteignable (et donc avec l'enrichissement) (cf. tableau 3.3). Ainsi, une augmentation de l'enrichissement de 1% entraîne une augmentation de la production d' $^{232}U + ^{236}Pu$ d'environ $35 mg/(GWe.an)$

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.3 – Production d' $^{232}U + ^{236}Pu$ en $mg/(GWe.an)$ au taux de combustion maximum respectif

% mol. ^{235}U	Inventaire au taux de combustion maximum $mg/(GWe.an)$
3	64.2
4.3	111
5	135

Le tableau 3.4 représente la proportion d' $^{232}U (+^{236}Pu)$ dans le vecteur uranium à la fin de l'irradiation (au taux de combustion maximum atteignable relatif à chaque enrichissement). Il est intéressant de remarquer que cette quantité varie du simple au quadruple entre 3% et 5% d'enrichissement. En effet plus l'enrichissement est important et plus le taux de combustion maximum atteignable est grand donc plus de fissions ont eu lieu. Par conséquent, moins de noyaux d' ^{235}U et d' ^{238}U (par conversion en ^{239}Pu) sont présents. Une plus grande production de noyau d' $^{232}U (+^{236}Pu)$ et une quantité moindre d'uranium en fin d'irradiation entraine donc cette plus grande proportion pour le combustible le plus enrichi.

Tableau 3.4 – Proportion d' $^{232}U + ^{236}Pu$ (en ppb) dans le vecteur uranium au taux de combustion maximum respectif

% mol. ^{235}U	Proportion d' $^{232}U + ^{236}Pu$ au tx. combustion maximum (ppb)
3	2.03
4.3	5.51
5	8.02

Le tableau 3.5 relate l'importance relative de chacune des voies en %. Il se lit de la façon suivante : la voie X produit x% de l' ^{232}U y% du ^{236}Pu et z% de la somme des deux, présents à $t=36GWj/tMLi$ pour un enrichissement de 3%. Le lecteur peut se reporter à la section 2.4 pour connaître la façon dont la part de chacune des voies a été calculée. Il est intéressant de noter que les principales voies passent par la décroissance du ^{236}Pu et que par conséquent la majeure partie de l' ^{232}U est encore sous la forme de ^{236}Pu à la fin de l'irradiation (cf. tableau 3.2).

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.5 – Part des différentes voies dans la production de l' ^{232}U et du ^{236}Pu .
3% ^{235}U , 36GWj/tMLi.

Voies	Prod. ^{232}U %	Prod. ^{236}Pu	Total
3.1 ($^{235}U(n, \gamma)...$)	32.2	75.9	63.8
3.2 ($^{238}U(n, 2n)...$)	12.3	24.1	20.9
3.3 ($^{234}U \xrightarrow{\alpha} ^{230}Th...$)	52.1	-	14.4
3.4 ($^{235}U \xrightarrow{\alpha} ^{231}Th...$)	3.4	-	0.9

Ce qui suit explique pourquoi un combustible plus enrichi produit moins de ^{236}Pu pour le même taux de combustion.

La puissance étant constante pour ces 3 simulations et le flux étant normalisé à cette puissance il vient que si N_{235U} augmente (du fait de l'enrichissement) alors le produit $\langle \sigma_{235U}(n, f) \rangle \langle \phi \rangle$ diminue. Pour rappel la puissance P vaut à $t = 0$:

$$P = N_{235U} \langle \sigma_{235U}(n, f) \rangle E_{235U} \langle \phi \rangle$$

, avec E_{235U} l'énergie libérée lors d'une fission. Le nombre de fissions étant identique pour tous les enrichissements, la bosse rapide du flux ne varie pas. Le ralentissement n'est également pas affecté (rapport de modération, densités et températures identiques). Reste alors la partie thermique. Ainsi c'est cette dernière qui décroît avec l'enrichissement. Un flux thermique plus faible implique une section efficace plus petite. Pour résumer plus l'enrichissement augmente plus le flux diminue et plus les sections efficaces de capture sont petites.

Plus le combustible est enrichi, plus la production d' ^{236}U est importante (pour le même taux de combustion) du fait de la plus grande quantité d' ^{235}U . Cette plus grande quantité d' ^{235}U compense le fait que la section efficace moyenne $\langle \sigma_{235U}(n, \gamma) \rangle$ et le flux moyen $\langle \phi \rangle$ soient plus faibles. Le tableau 3.6 donne les écarts relatifs ($\frac{\Delta X}{X}$) entre le moins et le plus enrichi pour N_{235U} , $\langle \sigma_{235U}(n, \gamma) \rangle$ et $\langle \phi \rangle$ en début d'irradiation.

Tableau 3.6 – Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur le taux de réaction $N_{235U}(n, \gamma)$

	N_{235U}	$\langle \sigma_{235U}(n, \gamma) \rangle$	$\langle \phi \rangle$	Taux de Réaction ¹
$\frac{\Delta X}{X} =$ $\frac{X_{5\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=0$	+67%	-25%	-13%	+9%

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Ce raisonnement s'applique également à la production du ^{237}Np , à la nuance près que ce dernier est aussi produit par $^{238}U(n, 2n)$ (plus favorable quand moins enrichi). Ainsi la production de ^{237}Np est plus importante en début d'irradiation pour des combustibles moins enrichis, puis aux alentours de $18GWj/tMLi$ cette tendance s'inverse (cf. fig 3.1). La réaction $^{237}Np(n, 2n)^{236}Np^m$ est favorisée pour des faibles enrichissements. En effet la section efficace de cette réaction à seuil ne varie pas avec la teneur en ^{235}U , cependant le flux est plus important pour des combustibles moins enrichis, si bien que la production de ^{236}Pu est plus grande à faible enrichissement malgré un plus faible inventaire en ^{237}Np . Le tableau 3.7 donne les écarts relatifs entre le moins et le plus enrichi pour $N_{^{237}Np}$, $< \sigma_{^{237}Np}(n, 2n) >$ et $< \phi >$ à $36GWj/tMLi$.

Tableau 3.7 – Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur le taux de réaction $N_{^{237}Np}(n, 2n)$

	$N_{^{237}Np}$	$< \sigma_{^{237}Np}(n, 2n) >$	$< \phi >$	Taux de Réaction
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{5\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=36GW/tMLi$	10%	0%	-21%	-14%

$$1. \frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi}$$

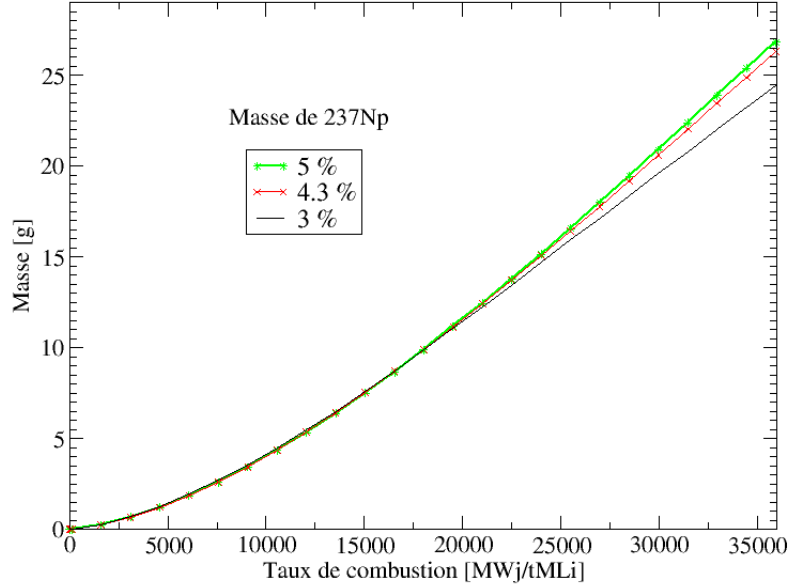


FIGURE 3.1 – Inventaires de ^{237}Np au cours de l'irradiation

Pour ce qui est de la production d' ^{232}U seule (hors ^{236}Pu), la voie principale est celle passant par la décroissance de l' ^{234}U suivie de deux captures (cf .tableau 3.5). Les sections efficaces moyennes de captures liées à cette voie et le flux sont plus importants à faible enrichissement. Cependant l'inventaire en ^{234}U est, pour un même taux de combustion, plus important à plus haut enrichissement. Ceci compense les plus faibles sections efficaces de captures et le flux plus petit, si bien que la production d' ^{232}U est plus importante pour des enrichissements plus importants. Pour s'en convaincre le lecteur peut se référer au tableau 3.8 qui donne les écarts relatifs entre le moins et le plus enrichi pour $N_{230\text{Th}}$, $N_{231\text{Pa}}$, $< \sigma_{230\text{Th}}(n, \gamma) >$, $< \sigma_{231\text{Pa}}(n, \gamma) >$ et $< \phi >$ à 36 GWj/tMLi ainsi qu'au tableau 3.9 qui détaille la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu pour chaque voie de production et pour 3% et 5% d'enrichissement à 36 GWj/tMLi. Ce calcul permet de voir l'effet de l'enrichissement dans les mêmes conditions d'irradiations.

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.8 – Écart entre les simulations (3% et 5% d' ^{235}U) sur les taux de réactions $^{230}Th(n, \gamma)$ et $^{231}Pa(n, \gamma)$

	$N_{^{230}Th}$	$< \sigma_{^{230}Th}(n, \gamma) >$	$< \phi >$	Taux de Réaction
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{5\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=36GW/tMLi$	134%	-3%	-21%	80%
	$N_{^{231}Pa}$	$< \sigma_{^{231}Pa}(n, \gamma) >$	$< \phi >$	Taux de Réaction
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{5\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=36GW/tMLi$	108 %	-12%	-21%	45%

Tableau 3.9 – Variation de l'inventaire en ^{232}U et en ^{236}Pu avec l'enrichissement pour chaque voie (en $mg/tMLi$) à $36GWj/tMLi$

	^{232}U		^{236}Pu	
Enrichissement	3%	5%	3%	5%
Voies				
3.1($^{235}U(n, \gamma)...$)	0.17	0.16 (-6)*	1.043	1.02 (-2)
3.2($^{238}U(n, 2n)...$)	0.06	0.05 (-16)	0.33	0.28 (-15)
3.3($^{234}U \xrightarrow{\alpha} ^{230}Th...$)	0.27	0.41 (+52)	-	-
3.4($^{235}U \xrightarrow{\alpha} ^{231}Th...$)	0.018	0.03 (+66)	-	-
Total	0.52	0.65	1.37	1.30

(*) Pourcentage d'augmentation par rapport à 3%

Les totaux du tableau 3.9 dont les valeurs ont été calculées par la méthode voie (cf. section 2.4) sont en accord avec les résultats du tableau 3.2 issus du calcul MURE.

3.1.2 Inventaires au cours du refroidissement

À la fin de l'irradiation le ^{236}Pu n'a pas encore totalement décré. L'inventaire en ^{232}U atteint un maximum au cours du refroidissement, t_{max} , le temps auquel ce maximum a lieu, dépend du rapport du nombre de noyaux d' ^{232}U sur celui de ^{236}Pu présent au déchargement. t_{max} se calcule en résolvant les équations de Bateman pour $N_{^{232}U}(t)$ puis en annulant la dérivée. t_{max} s'écrit :

$$t_{max} = \ln \left(\frac{\lambda_{^{232}U}}{\lambda_{^{236}Pu} - \lambda_{^{232}U}} + \frac{\lambda_{^{232}U}}{\lambda_{^{236}Pu}} \frac{N_0^{^{232}U}}{N_0^{^{236}Pu}} \right) \cdot \frac{1}{2\lambda_{^{232}U} - \lambda_{^{236}Pu}}$$

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Le rapport $\frac{N_0^{232U}}{N_0^{236Pu}}$ varie entre 0.63 (3% et 36GWj/tMLi) et 0.36 (5% et 65GWj/tMLi) ce qui correspond respectivement à $t_m = 12.0ans$ et $t_m = 12.8ans$. La figure 3.2 représente l'inventaire d' ^{232}U au cours du refroidissement pour les trois enrichissements et pour leurs taux de combustion maximum normalisé par GWe.an (facteur de charge : 0.85, rendement : 0.33).

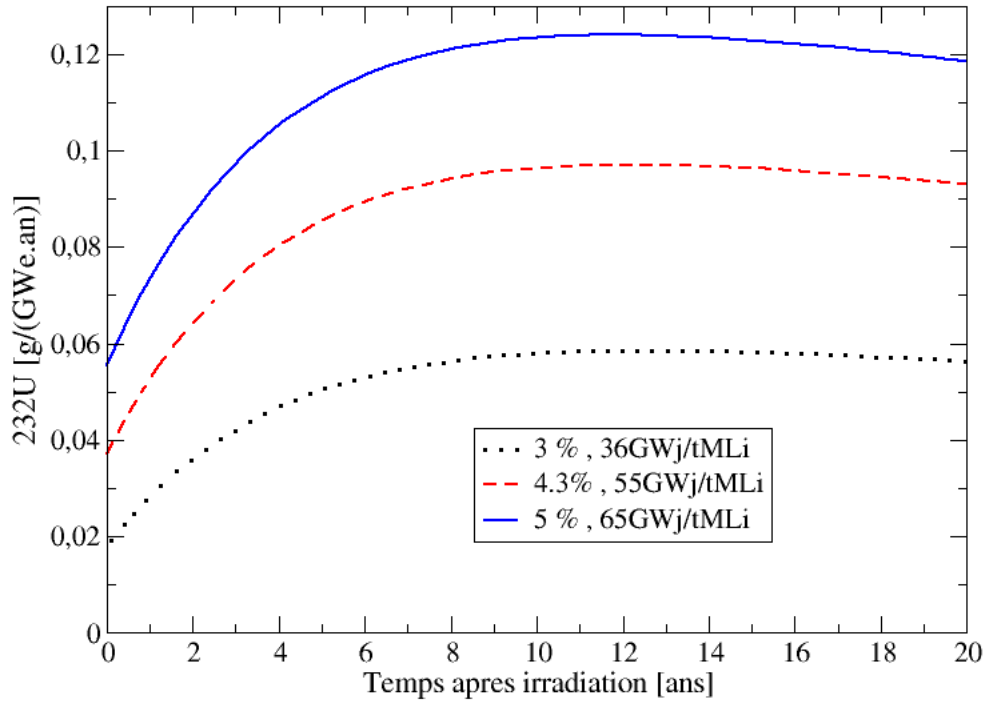


FIGURE 3.2 – Inventaires en ^{232}U (g/(GWe.an)) au cours du refroidissement

Il est intéressant de remarquer sur cette figure que les inventaires en ^{232}U dans le cycle varient jusqu'à un facteur 3 au cours du refroidissement entre un enrichissement à 3 % permettant d'atteindre 36GWj/tMLi et un enrichissement de 5% permettant d'atteindre 65GWj/tMLi

3.1.3 Influence du temps séparation-irradiation

En France l'uranium naturel (yellow cake) est purifié et transformé en UF_4 à l'usine COMURHEX de Malvési, cette poudre d' UF_4 subit une nouvelle étape de

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

fluoration à l'usine COMURHEX de Pierrelatte pour devenir de l' UF_6 . L' UF_6 , gazeux à 56 °C, est par la suite enrichi en ^{235}U par ultra-centrifugation à l'usine Georges Besse 2 de Pierrelatte. Enfin l' UF_6 est reconverti en poudre d' UO_2 (FBFC Romans), dernière étape avant la fabrication des pastilles (cf. section 1.2).

On considère que l'intervalle de temps entre la purification chimique de l'uranium (site de Malvési) et la re-conversion en UO_2 est suffisamment court pour que le composé UO_2 en sortie de re-conversion ne contienne aucun descendant de l'uranium. Le tableau 3.10 représente la proportion de ^{230}Th et de ^{231}Pa dans l'uranium d'un combustible enrichi à 4.3 % d' ^{235}U pour différents temps après séparation chimique.

Tableau 3.10 – Part du ^{230}Th et ^{231}Pa dans de l' UO_2

Temps	2 mois	1 an	5 ans	10 ans
Isotopes	% mol			
^{234}U	0.062			
^{235}U	4.300			
^{238}U	95.638			
Impuretés	ppb mol.			
^{230}Th	0.29	1.75	8.74	17.5
^{231}Pa	$6.8 \cdot 10^{-3}$	0.04	0.21	0.42

Au lieu de réaliser une évolution pour plusieurs temps après séparation chimique, c'est à dire une simulation par teneur en ^{231}Pa et ^{230}Th il peut être judicieux d'utiliser les inventaires adjoints N^+ . L'inventaire adjoint (cf section 2.3) d'un noyau AX $N^+(t, t_{max})$ lié à l'observable $N_{232U}(t_{max} = fin\ irradiation)$ s'interprète de la façon suivante : $N_{AX}^+(t, t_{max})$ est la probabilité au temps d'irradiation t qu'un noyau AX devienne un noyau d' ^{232}U à la fin de l'irradiation. Ainsi la production supplémentaire d' ^{232}U , ΔN_{232U} , dû au temps de latence, T , entre la fabrication du combustible et l'irradiation (pour t_{max} fixé et $t = 0$) est donnée par :

$$\Delta N_{232U} = N_{231Pa}^+(t = 0) \cdot N_{231Pa}(T) + N_{230Th}^+(t = 0) \cdot N_{230Th}(T)$$

de plus

$$N_{230Th}(T) = \frac{\lambda_{234U}}{\lambda_{230Th} - \lambda_{234U}} N_{234U}(T = 0) (\exp(-\lambda_{234U}T) - \exp(-\lambda_{230Th}T))$$

$$N_{230Th}(T) \stackrel{\lambda T \ll 1}{\approx} \lambda_{234U} N_{234U}(T = 0) \cdot T$$

de même, et si l'on considère que le ^{231}Th décroît instantanément en ^{231}Pa

$$N_{231Pa}(T) \approx \lambda_{235U} N_{235U}(T = 0) \cdot T$$

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Finalement on obtient sous la forme d'une équation très simple la quantité supplémentaire $\Delta N_{232U}(T)$ ^{232}U produite du fait de l'intervalle T :

$$\Delta N_{232U}(T) = N_{231Pa}^+(t=0)\lambda_{235U}N_{235U}(T=0).T + N_{230Th}^+(t=0)\lambda_{234U}N_{234U}(T=0).T$$

La quantité d' ^{232}U produite en fonction du temps entre la séparation chimique et l'irradiation (T) est donné par :

$$N_{232U}(T) = N_{232U}(T=0) + \Delta N_{232U}(T) \quad (3.5)$$

Avec $N_{232U}(T=0)$ la quantité d' ^{232}U produite avec un temps de latence nul. Appliquons ceci au calcul précédent, les résultats du calcul des N^+ pour l'évolution du combustible enrichi à 4.3%, ne contenant pas d'impuretés, sont donnés dans le tableau 3.11.

Tableau 3.11 – Valeurs des N^+ à $t=0$ du ^{231}Pa et du ^{230}Th associées à la production d' ^{232}U

$N^+(0, t_{max})$	^{231}Pa	^{230}Th
$t_{max} = 36GWj/tMLi$	0.492	0.188
$t_{max} = 55GWj/tMLi$	0.464	0.300

Le tableau montre que le N^+ du ^{231}Pa diminue avec le taux de combustion. Le tableau se lit de la sorte : 49.2 % du ^{231}Pa présent à $t=0$ deviendra de l' ^{232}U à $36GWj/tMLi$ contre 46.4% à $55GWj/tMLi$. Ainsi il arrive un moment où le taux de production d' ^{232}U par la voie $^{231}Pa(n, \gamma)$ devient plus faible que le taux de disparition de l' ^{232}U produit par cette même voie. C'est ce que révèle la figure 3.3 où est tracé la quantité d' ^{232}U produite par la voie $^{231}Pa(n, \gamma)$ pour un noyau de ^{231}Pa présent à $t=0$. Cette figure a été produite en utilisant la "méthode voie" définie en 2.4, en ne considérant que les réactions sur le ^{231}Pa , le ^{232}Pa et l' ^{232}U avec un seul noyau de ^{231}Pa présent initialement. La figure 3.3 trace aussi l'évolution du $N^+(0, t_f)$ du ^{230}Th en fonction de t_f (taux de combustion final) en utilisant la même méthode.

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

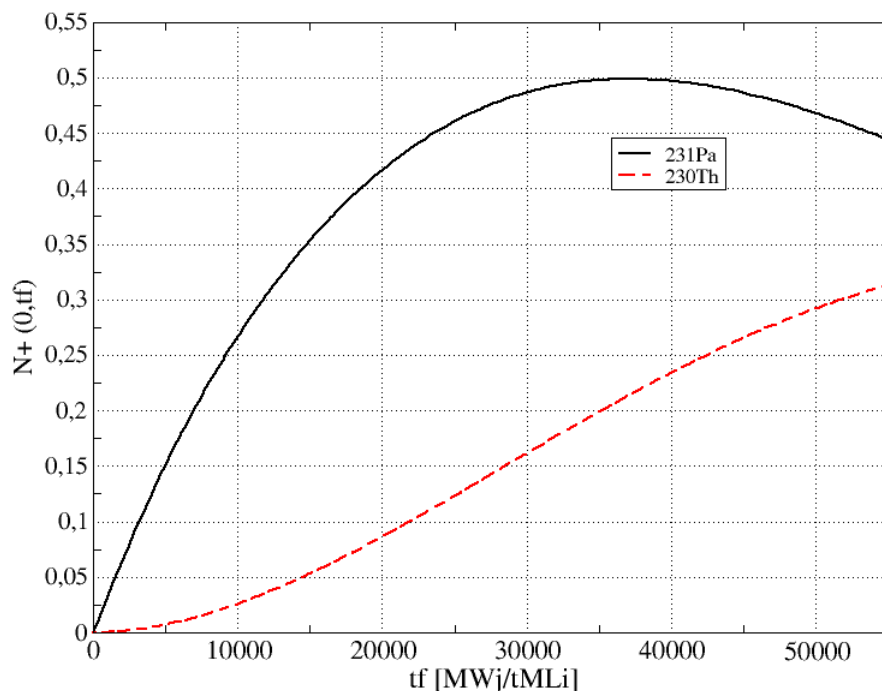


FIGURE 3.3 – Variation des $N^+(0, t_f)$ en fonction du taux de combustion final (t_f) pour un enrichissement initial de 4.3 %

A partir de l'équation 3.5, du tableau 3.11 et de la deuxième ligne du tableau 3.2 on obtient les inventaires d' ^{232}U ($+^{236}Pu$) en fonction du temps de latence T , et ce sans qu'il eut été nécessaire de faire un calcul MURE pour chaque T . Ces résultats sont regroupés sous la forme d'un tableau (3.12). Afin de vérifier que ce calcul par N^+ soit valide, une évolution MURE avec une contamination en ^{231}Pa et ^{230}Th équivalent à $T=10$ ans a été réalisée. Il en résulte une production de $^{236}Pu + ^{232}U$ de 10.32 mg/tMLi à 55 GWj/tMLi , ce qui est en accord avec le calcul par N^+ .

Tableau 3.12 – Quantités d' ^{232}U (mg/tMLi) produites en fonction de T (calculées par N^+)

$T=$	0	2 mois	6 mois	1 an	2 ans	5 ans	10 ans
$t_{max} = 55 \text{ GWj/tMLi}$	4.99 (3.23)	5.08	5.25	5.52	6.05	7.64	10.30

(\quad)^{*} : dont ^{236}Pu

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Pour un taux de combustion de $55GWj/tMLi$, l'augmentation de la quantité d' ^{232}U est de $0.53\text{ mg}/tMLi$ par année séparant la séparation chimique de l'irradiation (soit environ 10% par an). Pour éviter une synthèse trop importante d' ^{232}U il est préférable de ne pas trop attendre entre la séparation chimique et la mise en réacteur.

Commentaires sur le calcul par N^+ :

Il est important de noter que cette façon de calculer les inventaires à l'aide des N^+ n'est valable que pour un enrichissement donné et ne peut s'appliquer pour un autre enrichissement. En effet on a vu précédemment que le flux et les sections efficaces de captures varient avec la teneur en noyaux fissiles. De ce fait la matrice A varie et par conséquent les N^+ . De la même façon si les noyaux AX , le noyau perturbé (^{230}Th puis ^{231}Pa dans l'application ci dessus), et AY (^{232}U), l'observable, ont une forte influence sur la forme du spectre et donc sur les sections efficaces alors cette méthode n'est pas adaptée et une évolution MURE est nécessaire. Dans notre exemple l' ^{232}U , le ^{231}Pa et le ^{230}Th sont produits en très faibles quantités, ils n'ont aucun impact sur la forme du spectre, en revanche perturber l' ^{235}U pour calculer la production d' ^{232}U en fonction de l'enrichissement n'est pas possible.

3.1.4 Uranium de Retraitement

Une évolution MURE avec de l'uranium de retraitement enrichi (URTe) a été réalisée, le vecteur isotopique de cet uranium (cf. tableau 3.13) est caractéristique de celui utilisé dans les réacteurs Français de CRUAS-3 et CRUAS-4, il provient de la référence [URT07]. L'uranium de retraitement possède une proportion élevée de l'isotope 236, la présence de ce poison neutronique nécessite un enrichissement plus important que pour de l'uranium naturel enrichi pour obtenir un taux de combustion équivalent (*e.g* un enrichissement de 3.567% mol. permet d'obtenir le même taux de combustion qu'un combustible à l'uranium naturel enrichi à 3.25 %). La présence de l' ^{236}U et de l' ^{232}U dans le combustible frais va, bien entendu, être responsable d'un inventaire en ^{236}Pu et en ^{232}U plus important que dans le cas de l'uranium naturel enrichi. La figure 3.4 présente l'inventaire d' ^{232}U seul au cours de l'irradiation ainsi que le détail pour chaque voie. Chaque courbe représente la quantité d' ^{232}U créé par une voie donnée (cf. section 2.4). Le numéro de chaque voie fait référence à celui donné en section 3.1. La voie D, est celle due à la présence d' ^{232}U en début d'irradiation (seules les réactions de destruction de l' ^{232}U ne sont pas supprimées de

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

l'arbre).

La figure montre qu'au début de l'irradiation l' ^{232}U présente dans le combustible est peu à peu détruit, cette destruction n'est pas tout de suite compensée par la production, du fait, principalement, de la latence introduite par la période du ^{236}Pu et des deux réactions nécessaire à sa synthèse. Ainsi la quantité d' ^{232}U passe par un minimum aux alentours de $30GWj/tMLi$. La quantité d' ^{232}U présente à la fin de l'irradiation (au taux de combustion maximum de $40GWj/tMLi$) est environ 22 % inférieure à celle avant la mise en coeur puis devient supérieure au bout d'un an et demi de refroidissement, jusqu'à devenir 2,7 fois plus grande au bout de 12 ans.

Tableau 3.13 – Vecteur isotopique de l'URTe et de l'Unat enrichi en début de cycle

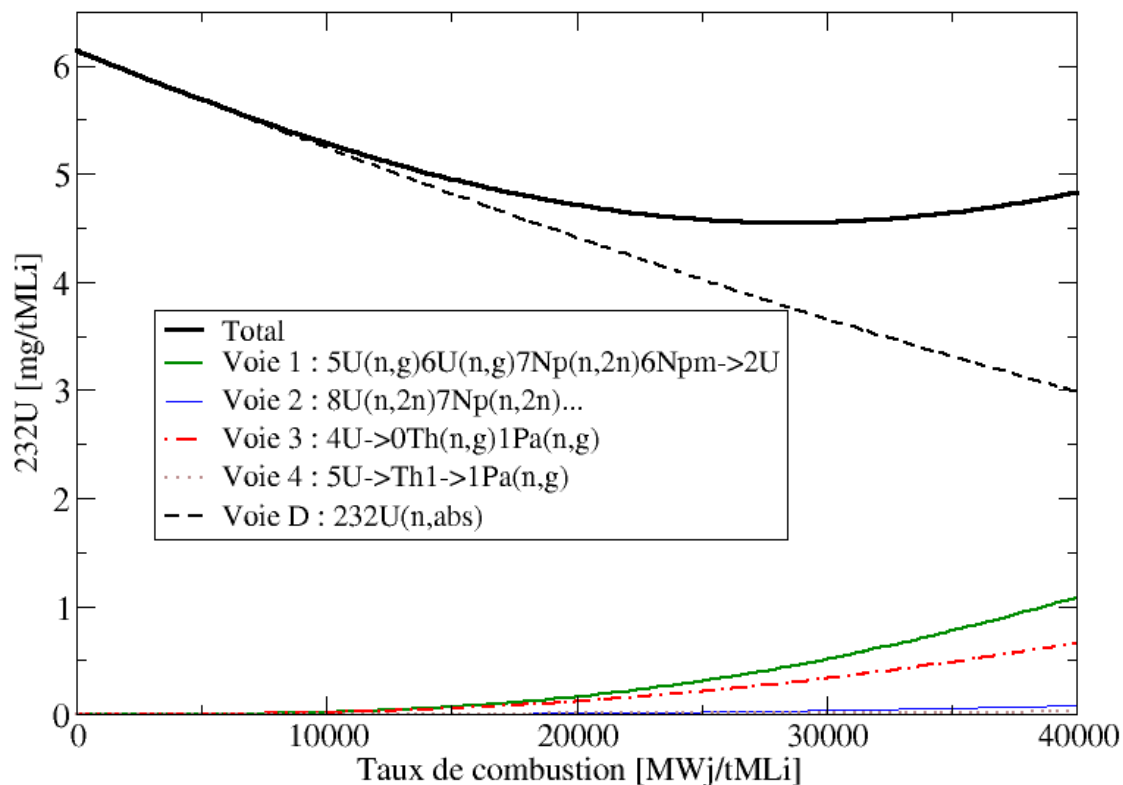
Isotope	URTe (% mol.)	Unat enrichi
^{235}U	3.567	3.567
^{236}U	1.191	-
^{234}U	0.081	0.048
^{232}U	6.3 ppb	-

Le tableau 3.14 compare voie par voie les quantités d' ^{232}U et de ^{236}Pu présentent en fin d'irradiation pour l'URTe et l'Unat enrichi (composition donnée dans le tableau 3.13). Le fait que l'URTe produise plus de $^{232}U + ^{236}Pu$ que l'Unat enrichi (environ 4 fois plus) provient en majorité de la présence d' ^{232}U et surtout d' ^{236}U en début d'irradiation (voie D et 1). La plus grande quantité d' ^{234}U en URTe augmente la production de la voie 3 d'un facteur équivalent au rapport $\frac{N_{234U}^{URTe}(0)}{N_{234U}^{Unat enr.}(0)}$.

Tableau 3.14 – Quantité d' ^{232}U et de ^{236}Pu à la fin de l'irradiation pour de l'URTe et de l'Unat enrichi à $40 GWj/tMLi$

Voies	Unat enrichi (3.567 %)		URTe	
	^{236}Pu (mg/tMLi)	^{232}U (mg/tMLi)	^{236}Pu	^{232}U
1	1.29	0.23	4.84(0.95)*	1.07(0.17)*
2	0.36	0.078	0.38	0.083
3	-	0.40	-	0.65
4	-	0.024	-	0.024
D	-	-	-	2.99
Total	1.65	0.73	5.22	4.82

(*)* dont produit seulement à partir de l' ^{235}U (i.e $N_{236U}(t=0) = 0$)

FIGURE 3.4 – Production d' ^{232}U dans un combustible URTe selon chaque voieTableau 3.15 – Proportion d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ dans le vecteur uranium et production d' ^{232}U par unité d'énergie électrique produite

Prod. $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$	URTe	Unat enrichi (3.567%)
$\text{mg}/\text{GWe.an}$	313	76
ppb	11.1	2.68

Le tableau 3.15 représente la quantité d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ produite par le combustible URTe et UO_2 ayant tous deux le même enrichissement et le même taux de combustion en proportion du vecteur uranium et par unité d'énergie électrique produite. Pour toutes ces normalisations l' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ est quatre fois plus présent en URTe qu'en UO_2 . La présence d' ^{232}U et surtout d' ^{236}U dans le vecteur URte en début d'irradiation en est la cause.

3.1.5 Résumé des résultats

- L’enrichissement, de part l’augmentation du taux de combustion atteignable qu’il permet, entraîne une production plus élevée d’ ^{232}U . L’ ^{232}U est trois fois plus présent dans le cycle pour un combustible enrichi à 5 % qu’à 3 %.
- La proportion d’ ^{232}U dans le vecteur uranium est, à la fin de l’irradiation, quatre fois plus importante pour un enrichissement de 5% que 3%. En cause : l’augmentation du taux de combustion qui entraîne une plus grande production d’ ^{232}U par $tMLi$ et une plus grande destruction de l’uranium : l’ ^{235}U (par fission) et d’ ^{238}U (par conversion en ^{239}Pu) en particulier.
- Le temps entre la purification chimique de l’uranium et la mise en réacteur entraîne une surproduction d’ ^{232}U de 10 % par an.
- La production d’ ^{232}U est 4 fois plus importante en combustible URTe qu’en combustible UO_2 pour le même enrichissement et le même taux de combustion. La présence initiale d’ ^{232}U et surtout d’ ^{236}U en sont la cause.

3.1.6 Sensibilités aux données nucléaires

L’étude proposée ici est la quantification de l’impact de la variation des données nucléaires sur les inventaires en ^{232}U et en ^{236}Pu en fin d’irradiation par calcul direct. Pour ce faire une série de simulations d’un dixième d’assemblage REP en combustible UO_2 enrichi à 4.3% mol. a été effectuée. Pour chaque simulation, une section efficace, choisie pour son importance dans la synthèse des noyaux sus-cités, est augmentée de 10% (afin d’apprécier la variation) sur la gamme d’énergie $[10^{-10}, 20]MeV$ (la section efficace totale n’est pas conservée). L’impact sur les inventaires est renseigné dans le tableau 3.16. De plus la création du ^{236}Pu dépend du rapport de branchement isomérique de la réaction $^{237}Np(n, 2n)^{236}Np^m$, ainsi l’écart avec une simulation où ce rapport est augmenté de 10% est présenté dans le tableau 3.16.

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.16 – Sensibilités de la production de l' ^{232}U et du ^{236}Pu aux données nucléaires à la fin de l'irradiation ($55GWj/tMLi$).

Réaction	Sensibilité (%/%)	
	Prod. ^{232}U	Prod. ^{236}Pu
$^{236}U(n, \gamma)$	0.31	0.58
$^{237}Np(n, 2n)$	0.52	1.0
$IBR^* ^{237}Np(n, 2n) ^{236}Np^m$	0.58	1.26
$^{231}Pa(n, \gamma)$	0.32	-
$^{232}U(n, \gamma)$	-0.061	-
$^{232}U(n, f)$	-0.13	-
$^{236}Pu(n, f)$	-0.13	-0.21
$^{236}Pu(n, \gamma)$	-0.020	-0.020

* Rapport de branchement isomérique

Comme attendu, la production de ^{232}U et ^{236}Pu est très sensible aux sections efficaces de la voie principale et notamment à la réaction $^{237}Np(n, 2n)$. Cette réaction est relativement connue jusqu'à 10 MeV (cf. figure 3.5b) pour ce qui est de la production de l'isomère (point bleu). En revanche il n'existe aucune mesure en dessous de 10 MeV pour la production totale (isomère + fondamental) (points verts). Toutes ces mesures ont été réalisées il y a plus de 30 ans.

La section efficace de la réaction $^{236}U(n, \gamma)$ est bien connue aux énergies thermiques cependant aucun point de mesure n'est disponible dans la zone des résonances résolues et les mesures dans la région rapide sont en désaccord (cf. fig 3.5a).

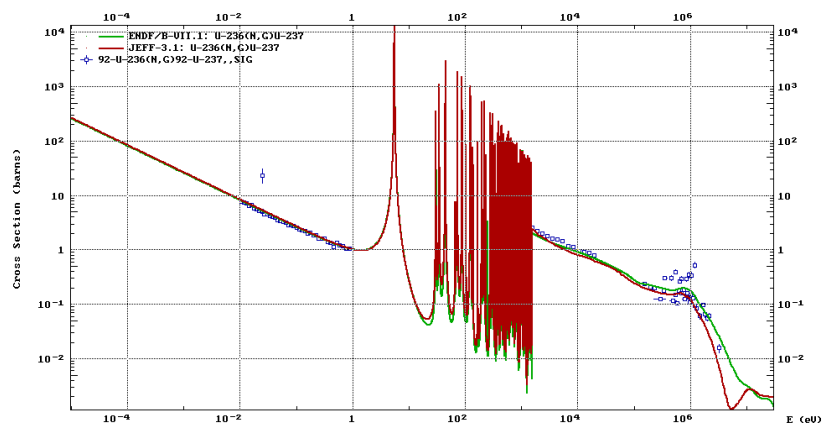
Pour ce qui est de la réaction $^{231}Pa(n, \gamma)$, une seule mesure a été réalisée (à 0.025 eV), si les bases de données passent par ce point en revanche des écarts importants (supérieur à un facteur 2) existent entre elles pour des énergies supérieures (cf. figure 3.6) .

Les sections efficaces de destruction de l' ^{232}U sont très mal connues. Aucune mesure n'a été réalisé sur la réaction (n, γ) (calculé avec le code GNASH) et les mesures de la réaction (n, f) (présentes en nombre) sont pour la plupart entachées d'erreurs conséquentes. De plus une seule mesure a été réalisée dans la région thermique (cf. figure 3.5c et 3.5d).

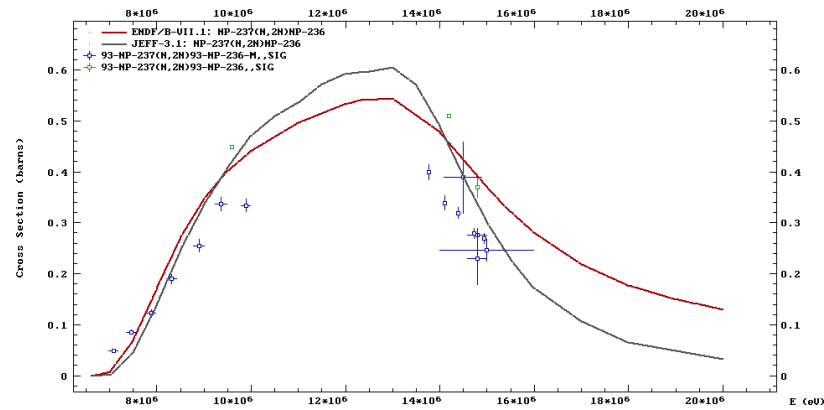
En résumé, la plupart de ces réactions souffrent d'un manque de mesure. Cependant, au regard des valeurs de sensibilité, si il fallait retenir deux sections efficaces à mesurer en priorité ces dernières seraient $^{237}Np(n, 2n)$ ^{236}Np (Production de l'état

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

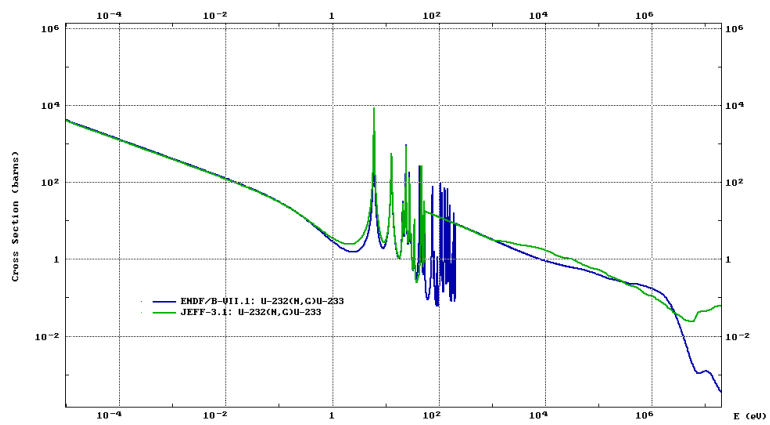
fondamental inconnu) et $^{236}U(n, \gamma)$, surtout dans la gamme d'énergie des résonances résolues. En cas de multi-recyclage de l'uranium, l' ^{232}U s'accumulant, la sensibilité de la production d' ^{232}U à ces sections efficaces de destructions serait plus importante. Dans ce cas la mesure de la section efficace $^{232}U(n, \gamma)$ actuellement inconnue serait appréciable.



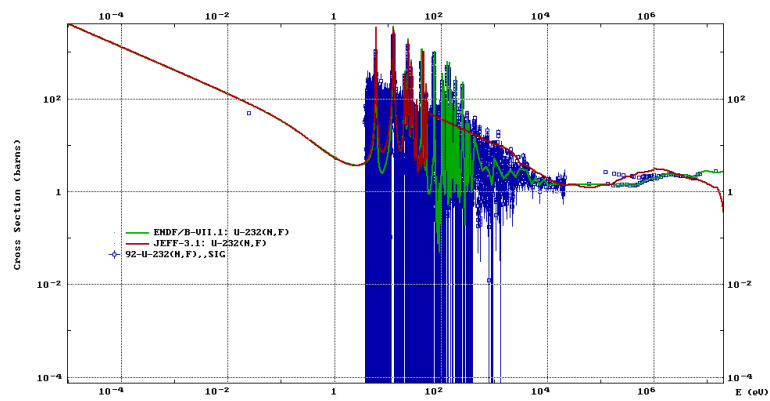
(a) $^{236}U(n, \gamma)$



(b) $^{237}Np(n, 2n)$



(c) $^{232}U(n, \gamma)$



(d) $^{232}U(n, f)$

FIGURE 3.5 – sections efficaces

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

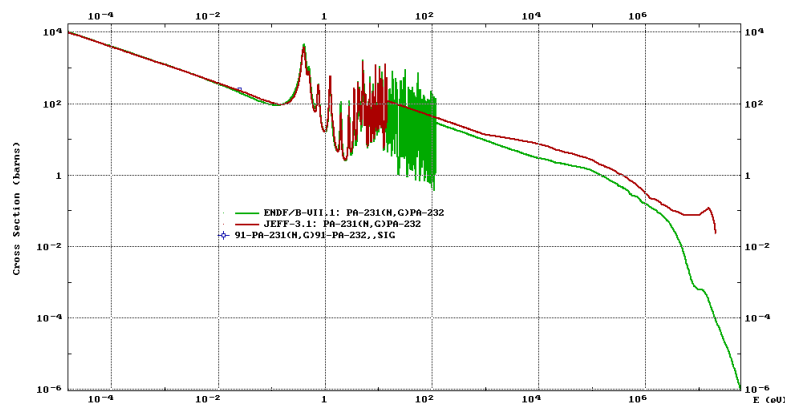


FIGURE 3.6 – $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$

Afin d'avoir un ordre d'idée des incertitudes sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu une comparaison avec la base de donnée JEFF3.1 a été entreprise, les écarts sont indiqués dans le tableau 3.17, à la fin de l'irradiation.

Tableau 3.17 – Écarts entre les bases JEFF 3.1 et ENDF 7.1 sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu

Noyau	% écart (ENDF/JEFF-1)
^{232}U	17.8
^{236}Pu	8.6

Les écarts entre bases de données impliquent une variation très importante sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu en combustible UO_2 (cf. tableau 3.17) si bien que les résultats énoncés dans les sections précédentes peuvent, légitimement, être soumis à discussions. Le tableau 3.18 indique la variation entre la quantité de ^{236}Pu et d' ^{232}U produite avec JEFF et celle avec ENDF pour chaque voie. Les inventaires calculés avec ENDF sont supérieurs à ceux calculés avec JEFF , et ce, pour toutes les voies de production.

3.1. COMBUSTIBLE UO_2

Tableau 3.18 – Écart entre les bases JEFF 3.1 et ENDF 7.1 sur la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu . Détails par voies

Voies	% écart (ENDF/JEFF-1)	
	^{232}U	^{236}Pu
3.1($^{235}U(n, \gamma)...$)	11.2	7.4
3.2($^{238}U(n, 2n)...$)	25.0	20.0
3.3($^{234}U \xrightarrow{\alpha} ^{230}Th...$)	22.0	-
3.4($^{235}U \xrightarrow{\alpha} ^{231}Th...$)	9.95	-

En plus de ces incertitudes provenant des données nucléaires s'ajoutent les incertitudes statistiques. Elles ont été estimées en réalisant la même évolution 50 fois tout en changeant la graine du générateur de nombre aléatoire de MCNP pour chaque calcul. L'incertitude est déterminée comme étant le rapport de l'écart type sur la moyenne des inventaires de ces 50 évolutions en fin d'irradiation. On obtient une erreur de 0.6 % sur l' ^{232}U et de 1.1% sur le ^{236}Pu .

3.1.7 Conclusion

La production d' ^{232}U dépend en premier lieu du taux de combustion, en effet l'équilibre (Production d' ^{232}U = destruction d' ^{232}U) n'est pas atteint. Ainsi plus le combustible est enrichi plus le taux de combustion peut être élevé et ainsi plus la production d' ^{232}U est importante. La voie de synthèse principale de l' $^{232}U + ^{236}Pu$ est $^{235}U(n, \gamma)^{236}U(n, \gamma)^{237}Np(n, 2n)^{236}Np^m \rightarrow ^{236}Pu \rightarrow ^{232}U$. Le ^{236}Pu ayant une demie-vie de 2.86 ans, la majeure partie de l' ^{232}U se trouve encore sous la forme de ^{236}Pu à la fin de l'irradiation. Ainsi la quantité d' ^{232}U croît de plus d'un facteur deux entre la fin de l'irradiation et 12 ans de refroidissement (cf figure 3.2).

Pour un même taux de combustion, un combustible plus enrichi produit plus de ^{236}Pu mais moins d' ^{232}U . La somme des inventaires des deux isotopes est plus importante pour le combustible le plus enrichi mais la variation reste faible. La moindre production de ^{236}Pu provient d'un flux plus faible et la plus grande production d' ^{232}U provient d'un inventaire plus important en ^{234}U (précurseur de la voie principale de production d' ^{232}U (hors ^{236}Pu) (cf. section 3.1.1).

3.2. COMBUSTIBLE MOX

Deux voies de production de l' ^{232}U passent par la décroissance de l' ^{234}U et de l' ^{235}U , si bien que le temps T séparant la purification de l'uranium de la mise en coeur influence la production d' ^{232}U . Ainsi pour un combustible enrichi à 4.3 % irradié pendant 55GWj/tMLi l'augmentation de la production d' ^{232}U (+ ^{236}Pu) est d'environ 10 % par an séparant la purification de l'irradiation. Ce chiffre est de 30 % par an pour l' ^{232}U seul (hors ^{236}Pu). Ces chiffres sont donnés comparativement au cas où $T=0$ (cf. section 3.1.3). Pour limiter la production d' ^{232}U il est préférable d'irradier le plus vite possible le combustible après la purification de l'uranium.

Afin d'améliorer les prédictions sur l' ^{232}U il serait intéressant de mesurer la section efficace $^{237}\text{Np}(n, 2n)^{236}\text{Np}$. En effet, le rapport de branchement isomérique n'a pas été mesuré près du seuil et sa sensibilité à la production d' ^{232}U est élevée. De plus, la réaction $^{236}\text{U}(n, \gamma)$ a une influence importante sur la production d' ^{232}U mais les mesures dans le domaine des résonances sont absentes et mériteraient d'être réalisées. Les écarts de 17.6 % et de 8.9 % sur la production de respectivement l' ^{232}U et le ^{236}Pu entre les bases JEFF 3.1 et ENDF 7.1 illustrent la nécessité de ces mesures.(cf. section 3.1.6).

Pour un combustible issu du retraitement de l'uranium (URTe) environ 22 % de l' ^{232}U , initialement présent, est détruit au cours de l'irradiation. Cependant la production de ^{236}Pu est telle qu'après 12 ans de refroidissement la quantité d' ^{232}U est 2.7 fois supérieure à la quantité initiale. Comparativement à un combustible provenant d'uranium naturel enrichi au même taux, et ayant atteint le même taux de combustion, le combustible URTe utilisé contient plus d' ^{232}U + ^{236}Pu . En cause : une présence initiale d' ^{232}U et surtout d' ^{236}U qui raccourcit d'une réaction la voie principale (cf section 3.1.4).

3.2 Combustible MOX

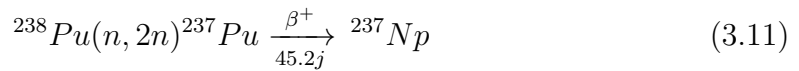
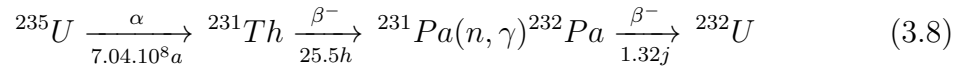
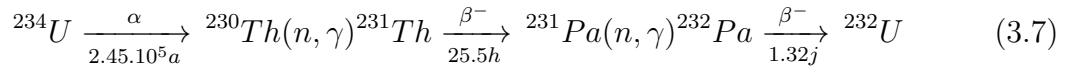
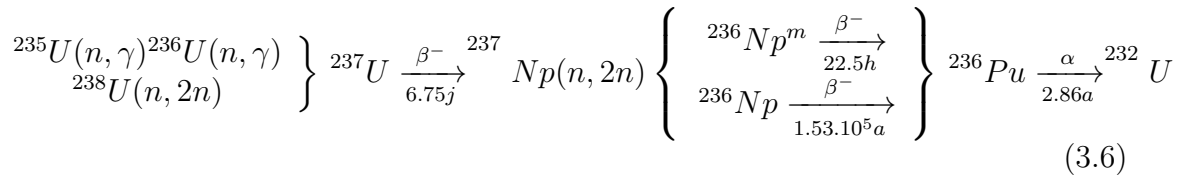
Le combustible étudié ici est un mélange d'oxydes de plutonium et d'uranium appauvri. Le vecteur plutonium correspond au plutonium moyen disponible en France en 2015 [YV05]. Les vecteurs uranium appauvri et plutonium sont donnés dans le tableau 3.19.

3.2. COMBUSTIBLE MOX

Tableau 3.19 – Composition isotopique du combustible MOX

Isotopes	(% mol.)
^{238}Pu	2.70
^{239}Pu	55.93
^{240}Pu	25.94
^{241}Pu	7.42
^{242}Pu	7.31
^{241}Am	0.70
^{234}U	0.001
^{235}U	0.020
^{238}U	99.979

Plusieurs voies de productions ont été identifiées, elles sont listées ci-dessous.



Il a été montré dans la section 3.1 que la principale voie de production de l' ^{232}U dans un combustible UO_2 est ${}^{235}\text{U}(n, \gamma) {}^{236}\text{U}(n, \gamma) \dots {}^{237}\text{Np}(n, 2n) \dots {}^{236}\text{Pu}$. L'inventaire en ${}^{235}\text{U}$ étant beaucoup plus faible en MOX, il paraît raisonnable d'intuiter que la production d' ${}^{232}\text{U}$ sera plus faible pour ce combustible. De plus il semble peu probable que les voies exclusives au MOX puissent compenser ce manque d' ${}^{235}\text{U}$. En effet les réactions (n,3n) ont des seuils élevés ($> 10\text{MeV}$) et les quantités de ${}^{238}\text{Pu}$ et

3.2. COMBUSTIBLE MOX

de ^{241}Am sont relativement faibles. Afin de vérifier ces assertions une évolution a été réalisée avec une teneur de 10.1 % mol. de plutonium (sans contamination au ^{237}Np issu de ^{241}Am) permettant d'atteindre un taux de combustion de 55GWj/tMLi . La quantité d' ^{232}U produite à la fin de l'irradiation est renseignée dans le tableau 3.20. La méthode N^+ a été utilisé pour déterminer quels noyaux présents initialement sont responsables de la synthèse d' ^{232}U . Ainsi, les valeurs de $N_{232\text{U}}^+$ et $N_{236\text{Pu}}^+$ sont données pour chaque noyau présent initialement. Le produit $N_j^+ \cdot N_i(t=0)$ correspond à la quantité de noyau j produit à la fin de l'irradiation par les noyaux i présents dans le combustible frais (donnés en $\mu\text{g/tMLi}$).

Tableau 3.20 – Production d' ^{232}U et de ^{236}Pu par les différents noyaux présents initialement ($\mu\text{g/tMLi}$)

Noyau	$N_{232\text{U}}^+$	$N_{236\text{Pu}}^+$	$N_{232\text{U}}^+ \cdot N_i(t=0)$ $\mu\text{g/tMLi}$	$N_{236\text{Pu}}^+ \cdot N_i(t=0)$ $\mu\text{g/tMLi}$
^{238}Pu	$1.29 \cdot 10^{-8}$	$9.88 \cdot 10^{-9}$	34.38	26.3
^{239}Pu	$1.01 \cdot 10^{-11}$	$4.95 \cdot 10^{-11}$	0.56	2.70
^{240}Pu	$1.21 \cdot 10^{-10}$	$4.87 \cdot 10^{-10}$	3.08	12.4
^{241}Pu	$4.08 \cdot 10^{-10}$	$1.29 \cdot 10^{-9}$	2.98	9.5
^{242}Pu	$7.21 \cdot 10^{-14}$	$4.48 \cdot 10^{-13}$	0.001	0.00
^{241}Am	$8.72 \cdot 10^{-9}$	$1.98 \cdot 10^{-8}$	6.02	13.7
Total	-	-	47.0	64.6
^{234}U	$7.84 \cdot 10^{-7}$	$1.18 \cdot 10^{-8}$	6.93	0.10
^{235}U	$1.95 \cdot 10^{-8}$	$7.022 \cdot 10^{-8}$	34.2	123
^{238}U	$3.99 \cdot 10^{-10}$	$1.16 \cdot 10^{-9}$	349	1011
Total	-	-	390	1134

Il ressort assez clairement du tableau 3.20 que l' ^{238}U est le noyau responsable de la quasi-totalité de la production d' ^{232}U et de ^{236}Pu . De plus, la majeure partie de l' ^{232}U est encore sous forme de ^{236}Pu à la fin de l'irradiation (75 %). Pour rappel, en combustible UO_2 et pour le même taux de combustion, la production totale est de 4.99mg/tMLi , soit environ trois fois plus. Les assertions introduites précédemment sont donc corrects : le combustible MOX produit moins d' ^{232}U et de ^{236}Pu car la quantité d' ^{235}U y est bien inférieure. Le tableau 3.21 compare pour plusieurs normalisations la production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ entre le combustible MOX et le combustible UO_2 (4.3% d' ^{235}U), les deux irradiés jusqu'à 55GWj/tMLi

3.2. COMBUSTIBLE MOX

Tableau 3.21 – Production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ par unité d'énergie électrique et proportion dans le vecteur uranium à la fin de l'irradiation (55GWj/tMLi)

Combustible	$\text{mg}/(\text{GWe.an})$	ppb (partie par milliard)
MOX	36	1.94
UO_2 4.3% (cf. section 3.1)	111	5.51

3.2.1 Influence du temps séparation-irradiation

3.2.1.1 Vieillissement du plutonium

La contamination en ^{237}Np , provenant de la décroissance de l' ^{241}Am lors du refroidissement entre la séparation chimique du plutonium et la mise en coeur du combustible MOX, n'a pas été prise en compte dans ce qui précède. Or, le ^{237}Np , étant un précurseur du ^{236}Pu , il peut avoir une influence sur l'inventaire en ^{236}Pu et ^{232}U . Il a été calculé que le plutonium issu du retraitement d'un combustible UOx enrichi à 3 %, irradié pendant 36GWj/tMLi , ayant refroidi trois ans avant séparation puis deux ans avant la mise en coeur, possède en son sein environ 120 ppm de ^{237}Np . La concentration est donc, pour un combustible MOX à 10.1% de plutonium, de environ 12 ppm par noyau lourd initial. Les $N_{^{236}\text{Pu}}^+$ et $N_{^{232}\text{U}}^+$ du ^{237}Np à $t = 0$ valent respectivement $4.7 \cdot 10^{-6}$ et $3.07 \cdot 10^{-6}$ ainsi, pour une mole de métal lourd initial, il est produit respectivement $12 \cdot 10^{-6} N_{^{236}\text{Pu}}^+$ et $12 \cdot 10^{-6} N_{^{232}\text{U}}^+$ de ^{236}Pu et de ^{232}U , soit respectivement $5.5 \cdot 10^{-11} \text{mol./mol.MLi}$ et $3.7 \cdot 10^{-11} \text{mol./mol.MLi}$. Ainsi la production supplémentaire d' ^{232}U et de ^{236}Pu induite par ce laps de temps est, respectivement, d'environ $35\mu\text{g/tMLi}$ et de $56\mu\text{g/tMLi}$. L'impact du temps entre la séparation chimique et la mise en coeur est donc relativement faible mais non négligeable puisqu'elle représente dans ce cas une augmentation d'environ 5.6 % de la production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$.

3.2.1.2 Vieillissement de l'uranium appauvri

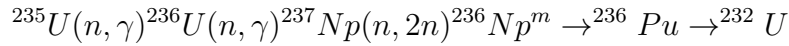
Le vieillissement de l'uranium appauvri laisse apparaître du ^{230}Th et du ^{231}Pa de par la décroissance de, respectivement, l' ^{234}U et l' ^{235}U . Étant donnée la faible concentration de ces deux derniers isotopes, la production supplémentaire d' ^{232}U causée par le vieillissement est faible. En utilisant la même méthodologie que celle

3.3. COMBUSTIBLE THU

définie en section 3.1.3, il vient que, si l'uranium appauvri a vieilli 30 ans, la production supplémentaire d' ^{232}U est de $20\mu\text{g}/t\text{MLi}$, ce qui est négligeable.

3.2.2 Conclusion

Étant donnée la faible teneur en ^{235}U du combustible MOX, la voie

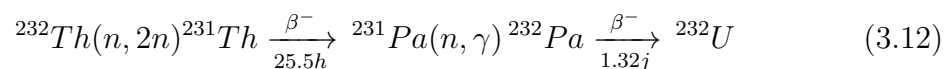


qui était la voie principale en combustible UO_2 est ici très faible. La majeure partie de l' $^{232}\text{U}(+^{236}\text{Pu})$ est causée par la présence de l' ^{238}U . Les isotopes du plutonium participent de façon limitée à la production de l' $^{232}\text{U}(+^{236}\text{Pu})$ ($\sim 7\%$ du total). De ce fait la production d' $^{232}\text{U}(+^{236}\text{Pu})$ est trois fois plus faible que dans le cas du combustible UO_2 . Le vieillissement du plutonium (apparition du précurseur ^{237}Np par $^{241}\text{Am} \xrightarrow[T_{1/2}=433\text{ans}]{\alpha} ^{237}\text{Np}$) augmente d'environ 5.6% la production d' $^{232}\text{U} + ^{236}\text{Pu}$ pour un plutonium vieux de deux ans après séparation. Le vieillissement de l'uranium appauvri impacte de façon plus anecdotique la production d' ^{232}U puisque pour de l'uranium appauvri vieux de trente ans la majoration de la production d' $^{232}\text{U}(+^{236}\text{Pu})$ n'est que d'environ 1% . Les variations des temps de latence du cycle ont, pour le combustible MOX une faible influence sur la production d' ^{232}U .

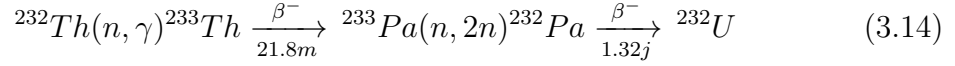
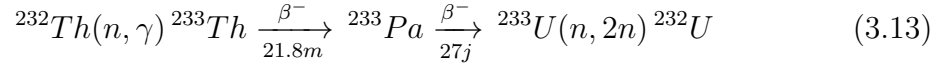
3.3 Combustible ThU

Le combustible en question ici est du $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ constitué exclusivement d' ^{233}U et de ^{232}Th . Un vecteur uranium ne contenant que de l' ^{233}U est, en pratique, quasiment impossible à obtenir. Il contient également de l' ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U et de l' ^{232}U dans des proportions variables selon la technologie de réacteur qui a servi à le synthétiser, selon le taux de combustion etc... Ceci étant, la proportion d' ^{233}U est supérieure à 90% pour un vecteur uranium provenant de l'irradiation d'un combustible $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$. Cette étude permet alors de dégager des tendances pour la production d' ^{232}U avec un combustible ThU dont le vecteur uranium provient du retraitement d'un combustible ThPuO_2 .

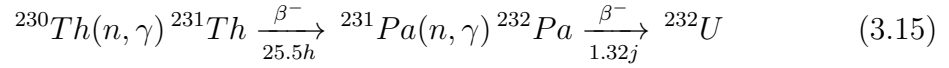
Les principales voies de synthèse de l' ^{232}U sont les suivantes :



3.3. COMBUSTIBLE THU



Si le thorium provient d'un minerai contenant de l'uranium :



Une première simulation, avec une teneur en ^{233}U de 3.55 % permettant d'atteindre un taux de combustion de 55GWj/tMLi a été réalisée. La figure 3.7 montre l'évolution de la quantité d' ^{232}U (+ ^{232}Pa) au cours de l'irradiation détaillée pour chaque voie de production. Bien que la voie passant par $^{233}\text{U}(n, 2n)$ soit prépondérante au tout début de l'irradiation, la voie 3.12 est à la fin de l'irradiation (55GWj/t) responsable de la quasi-totalité de la synthèse de l' ^{232}U (99.0%). Les voies 3.14 et 3.13 sont négligeables, elles représentent respectivement 0.16% et 0.84% du total.

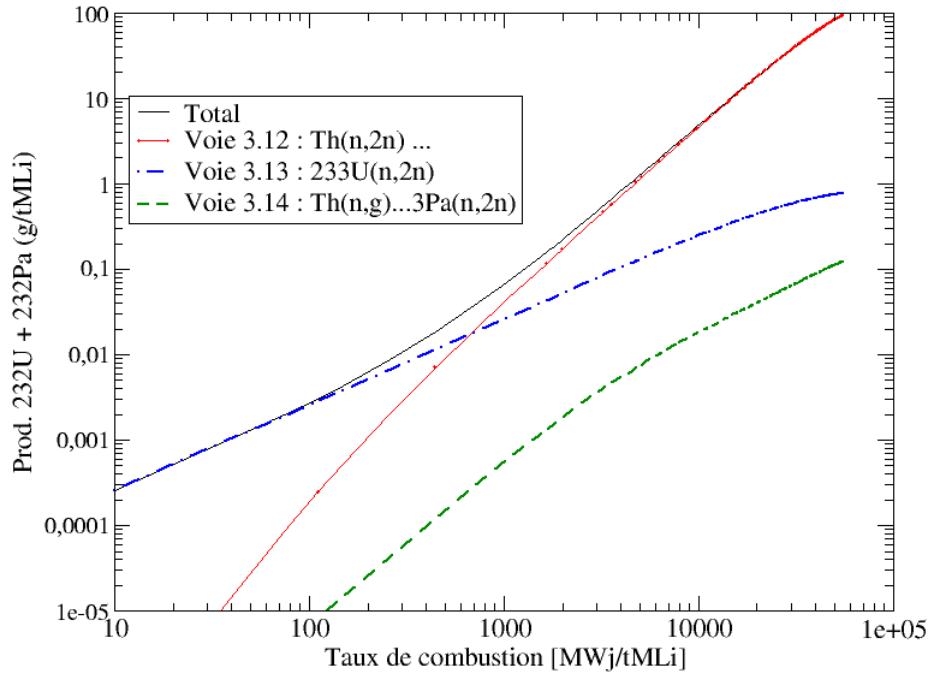


FIGURE 3.7 – Production d' ^{232}U (+ ^{232}Pa) en REP ThU. Détails par voies.

3.3.1 Impact de la teneur en uranium

Pour voir l'impact de la teneur sur la production ^{232}U , deux simulations ont été réalisées l'une avec 3% l'autre 4% (% mol. d' ^{233}U). Les résultats montrent que plus la teneur est élevée moins l'est la production d' ^{232}U pour le même taux de combustion. Les inventaires du tableau 3.22 sont données pour une irradiation de 42GWj/tMLi , soit le taux de combustion maximum atteignable pour une teneur de 3%.

Tableau 3.22 – Production d' ^{232}U en fonction de la teneur en ^{233}U à 42GWj/tMLi

teneur	3%	3.55%	4%
Prod. ^{232}U (g/tMLi) à t= 42GWj/tMLi	71.8	65.8	60.7

Le fait que la quantité du précurseur ^{232}Th soit plus grande en combustible peu concentré en uranium n'explique qu'en partie la plus grande production d' ^{232}U pour cette plus faible teneur. En effet, comme expliqué dans la section 3.1.1, le flux est normalisé à la puissance or cette puissance est identique pour chaque teneur, si bien que, si $N_{^{233}\text{U}}$ augmente alors le produit $\langle \sigma_{U[^{233}](n,f)} \rangle \langle \phi \rangle$ doit diminuer pour maintenir la puissance constante. Ainsi plus le combustible est concentré en uranium, plus la bosse thermique du spectre neutronique diminue (cf. figure 3.8a et section 3.1.1) et donc plus les sections efficaces de captures sont petites.

La quantité du précurseur ^{232}Th , le flux ainsi que la section efficace de la réaction $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ étant plus grands en combustible moins concentré, la production ^{232}U est plus importante. Le tableau 3.23 illustre cette assertion : il présente la variation de $\langle \phi \rangle$, $N_{^{232}\text{Th}}$, $\sigma_{^{232}\text{Th}(n,2n)}$ en début d'irradiation et de $\langle \phi \rangle$, $N_{^{231}\text{Pa}}$, $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}$ en milieu d'irradiation (21GWj/tMLi) entre la simulation à 3% et à 4% d' ^{233}U

3.3. COMBUSTIBLE THU

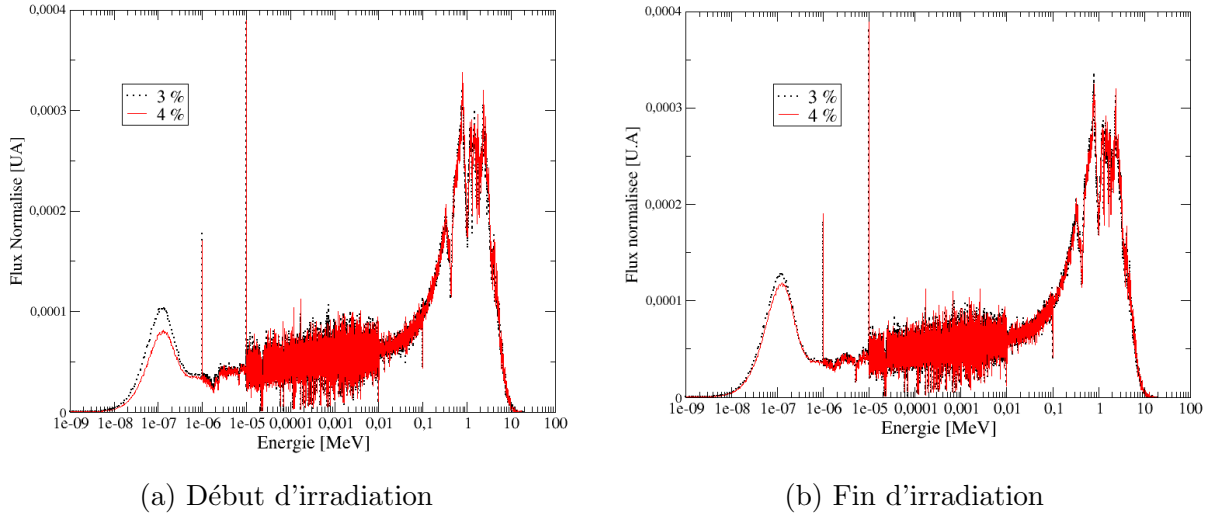


FIGURE 3.8 – Spectres neutronique

Tableau 3.23 – Écart entre les simulations (3 % et 4 % d' ^{233}U) sur le taux de réaction $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$

	$N_{^{232}\text{Th}}$	$\langle \sigma_{^{232}\text{Th}}(n, 2n) \rangle$	$\langle \phi \rangle$	Taux de Réaction ¹
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{4\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=0$	-1.03	0	-11.9	-12.8
	$N_{^{231}\text{Pa}}$	$\langle \sigma_{^{231}\text{Pa}}(n, \gamma) \rangle$	$\langle \phi \rangle$	Taux de Réaction
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{4\%}}{X_{3\%}} - 1$ à $t=21\text{GWj/tMLi}$	-6.31	-8.47	-11.9	-25.7

Le tableau 3.24 présente la production d' ^{232}U pour les trois enrichissements à leur taux de combustion maximum respectif. La production d' ^{232}U est donnée pour plusieurs normalisations. La production d' ^{232}U en g/tMLi évolue de façon quasi-linéaire avec la teneur en ^{233}U sur l'intervalle [3%-4%] : environ $40 (\text{g/tMLi})/\%$, de ce fait la production d' ^{232}U normalisée par unité d'énergie électrique produit reste stable avec la teneur. La quantité d' ^{232}U dans le cycle ne dépend donc pas de la teneur.

1. $\frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi}$

3.3. COMBUSTIBLE THU

Tableau 3.24 – Production d' ^{232}U en fonction de la teneur en ^{233}U à leurs taux de combustion maximum

teneur	3%	3.55%	4%
($g/tMLi$)	71.8	94.0	112
($kg/GWe.an$)	2.11	2.11	2.09
(%) dans \vec{U}	0.31	0.39	0.45
Taux de combustion Maximum ($GWj/tMLi$)	42	55	66

3.3.2 Impact du minerai de thorium utilisé

Les plus grandes réserves connues de thorium se situent dans des dépôts alluvionnaires et dans des sables de plages. Le thorium est incorporé dans la monazite [Ben05]. La monazite est un minéral de phosphate de formule chimique $(RE, Th, U)PO_4$ où RE signifie terre rare. La présence d'uranium dans ces roches dégrade légèrement la pureté isotopique du thorium. En effet le premier descendant de l' ^{234}U est le ^{230}Th , précurseur d' ^{232}U en réacteur. Il est indiqué dans la référence [Ben05] que selon la région le rapport (en masse) $\frac{U_{3O_8}}{ThO_2}$ dans la monazite varie de 0.02 (Afrique du Sud) à 1.38 (Italie) ce qui correspond à un rapport $\frac{U}{Th}$ de 0.015 et 1.03 respectivement. En considérant l'uranium à l'équilibre avec ses descendants, le nombre de noyaux de ^{230}Th par noyau d' ^{234}U est $\frac{\lambda_{234U}}{\lambda_{230Th}}$, ainsi la quantité de ^{230}Th pour un noyau d'uranium est $5.6 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{\lambda_{234U}}{\lambda_{230Th}}$. La proportion molaire de ^{230}Th dans le vecteur thorium s'écrit :

$$\left(\frac{^{230}\text{Th}}{\text{Th}} \right)^{mol.} = 5.6 \cdot 10^{-5} \frac{\lambda_{234U}}{\lambda_{230Th}} \frac{M_{Th}}{M_U} \frac{U}{Th}$$

avec M_U et M_{Th} les masses molaires moyennes de l'uranium et du thorium (le rapport $\frac{U}{Th}$ est un rapport de masse). La proportion $\frac{^{230}\text{Th}}{Th}$ varie ainsi de 0.25 ppm à 17 ppm. En considérant que la totalité du ^{230}Th devienne à l'issue de l'irradiation de l' ^{232}U , la quantité supplémentaire d' ^{232}U serait approximativement (pour un combustible à 3.55 % d' U [233]) de 0.242g/tMLi et 16g/tMLi soit une augmentation de respectivement 0.26% et 17 % (production de 94 g/tMLi pour le ThU 3.55% à 55GWj/tMLi .cf. 3.3).

En réalisant le calcul des inventaires adjoints on obtient le N^+ du ^{230}Th pour une

1. Proportion d' ^{234}U dans l'uranium naturel

3.3. COMBUSTIBLE THU

irradiation de $55GWj/tMLi$. La quantité d' ^{232}U supplémentaire est (en $g/tMLi$) :

$$\begin{aligned} \frac{m_{^{232}U}}{m_{MLi}} &= \frac{1}{\mathcal{N}a} N_{^{230}Th}^+ N_{^{230}Th} M_{^{232}U} \cdot \frac{\mathcal{N}a}{N_{Th} \left(\frac{e}{e-1} M_{^{233}U} + M_{Th} \right)} \cdot 10^6 \\ \frac{m_{^{232}U}}{m_{MLi}} &= \frac{M_{^{232}U}}{\left(\frac{e}{1-e} M_{^{233}U} + M_{Th} \right)} \cdot \frac{N_{^{230}Th}}{N_{Th}} \cdot N_{^{230}Th}^+ \cdot 10^6 \end{aligned} \quad (3.16)$$

avec e la teneur, M_X les masses molaires, $N_{^{230}Th}$ et N_{Th} respectivement le nombre de noyaux de ^{230}Th et le nombre total de noyaux de thorium, avant l'irradiation. La valeur de $N_{^{230}Th}^+(0, 55GWj/tMLi)$ pour le combustible à 3.55% d' ^{233}U irradié à $55GWj/tMLi$ est de 0.292 ($\sim 30\%$ du ^{230}Th présent initialement devient de l' ^{232}U à la fin de l'irradiation). La figure 3.9 représente la production supplémentaire d' ^{232}U induite par la présence d'uranium dans le minerai de thorium.

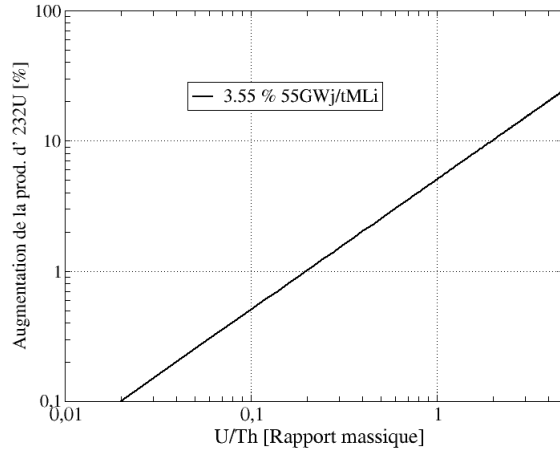


FIGURE 3.9 – Augmentation de la production d' ^{232}U en fonction du rapport $\frac{U}{Th}$ du minerai de thorium

A moins d'utiliser du minerai qui s'apparente plus à du minerai d'uranium que de thorium (*ie* $U/Th > 1$) la production supplémentaire d' ^{232}U , induite par la présence du ^{230}Th , reste limitée (+ 5.0 % pour $U/Th = 1$).

3.3.3 Résumé des résultats

- La synthèse d' ^{232}U provient presque exclusivement ($>99\%$) de la voie $^{232}Th(n, 2n)^{231}Pa(n, \gamma)$
- Sur la gamme $[3\% - 4\%]$ d' ^{233}U la quantité d' ^{232}U (en $g/tMLi$) augmente de $40g/tMLi/\%$

3.3. COMBUSTIBLE THU

- La quantité d' ^{232}U dans le cycle (*ie* quantité en $\text{kg}/(\text{GWe.an})$) ne dépend pas de la teneur en ^{233}U
- La proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium varie, selon la teneur en ^{233}U en début d'irradiation, de 0.31% à 0.45%. Pour rappel la proportion est de 5.5 *ppb* en combustible UO_2 (4.3% ^{235}U , 55 *GWj/tMLi*) et de 1.9 *ppb* en combustible MOX (10.1% Pu , 55 *GWj/tMLi*). La proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium est à l'issue de l'irradiation environ 1 million de fois plus grande en combustible ThU que ce qu'elle est en combustible UO_2 ou MOX .
- L'influence de la provenance du minerai de thorium sur la production d' ^{232}U est mineur. En effet, la production d' ^{232}U est augmentée de 5 % si le thorium provient d'un minerai où le rapport (en masse) $\frac{\text{Th}}{\text{U}}$ est égal à 1.

3.3.4 Sensibilités aux données nucléaires

Une étude de sensibilité aux données nucléaires a été réalisée. Comme à la section 3.1.6 plusieurs évolutions ont été effectuées, en faisant varier, pour chacune d'entre elles, une section efficace d'intérêt vis à vis de la synthèse de l' ^{232}U . Les valeurs de sensibilité sont données à la fin de l'irradiation (55 *GWj/tMLi*), pour une teneur de 3.55%, (cf. tableau 3.25). Il est intéressant de noter que la production d' ^{232}U est très peu sensible à ses sections efficaces de destruction. Le taux de production nette d' ^{232}U peut s'écrire de façon simplifié :

$$\frac{dN_{232\text{U}}}{dt} = N_{231\text{Pa}}\sigma_{(n,\gamma)}^{231\text{Pa}}\phi - N_{232\text{U}}\left(\sigma_{(n,\text{abs.})}^{232\text{U}}\phi + \lambda_{232\text{U}}\right)$$

à l'équilibre et en considérant que $\lambda_{232\text{U}} \ll \sigma_{(n,\text{abs.})}^{232\text{U}}\phi$ on a :

$$N_{231\text{Pa}}\sigma_{(n,\gamma)}^{231\text{Pa}} = N_{232\text{U}}\sigma_{(n,\text{abs.})}^{232\text{U}}$$

Pour que la sensibilité de $\sigma_{(n,\text{abs.})}^{232\text{U}}$ soit du même ordre que celle de $\sigma_{(n,\gamma)}^{231\text{Pa}}$ il faut que $\frac{N_{232\text{U}}}{N_{231\text{Pa}}}$ soit proche de $\frac{\sigma_{(n,\gamma)}^{231\text{Pa}}}{\sigma_{(n,\text{abs.})}^{232\text{U}}}$ soit ~ 2.3 . Or ce rapport est légèrement supérieur à 1 à la fin de l'irradiation.

Ainsi pour des temps d'irradiation plus longs, ou pour plusieurs cycles de recyclage du vecteur uranium, la production d' ^{232}U sera plus sensible à ses sections efficaces de destruction, car le rapport $\frac{N_{232\text{U}}}{N_{231\text{Pa}}}$ sera plus grand.

3.3. COMBUSTIBLE THU

Tableau 3.25 – Sensibilités de la production d' ^{232}U aux sections efficaces : combustible ThU

Section efficace	$^{232}\text{Th}(n, 2n)$	$^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$	$^{233}\text{U}(n, 2n)$	
Sensibilité (%/%)	0.90	0.53	0.034	
Section efficace	$^{232}\text{U}(n, f)$	$^{232}\text{U}(n, \gamma)$	$^{231}\text{Pa}(n, f)$	$^{233}\text{U}(n, f)$
Sensibilité	-0.14	-0.12	-0.0043	-0.096

D'après la figure 3.10, la section efficace $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ est relativement bien connue. En revanche, la section efficace de capture sur le ^{231}Pa n'est basée que sur une mesure (à 0.025eV), et au regard de la sensibilité de cette réaction à la synthèse de l' ^{232}U , il serait judicieux de réaliser une série de mesures. Notamment aux alentours de la première résonance (0.4 eV) où l'écart entre JEFF et ENDF est proche de 20 % (cf. sections efficaces en section 3.1.6).

Dans le cas d'un multi-recyclage de l'uranium, les sensibilités des sections efficaces de destruction de l' ^{232}U seront plus importantes. Ainsi, il pourrait également être une bonne idée de mesurer la section efficace $^{232}\text{U}(n, \gamma)$ pour laquelle aucune mesure n'a été réalisée (cf. sections efficaces en section 3.1.6). Cependant, au vue de l'activité gamma de l' ^{232}U , la fabrication et la manipulation de cibles de cet isotope peut s'avérer délicate.

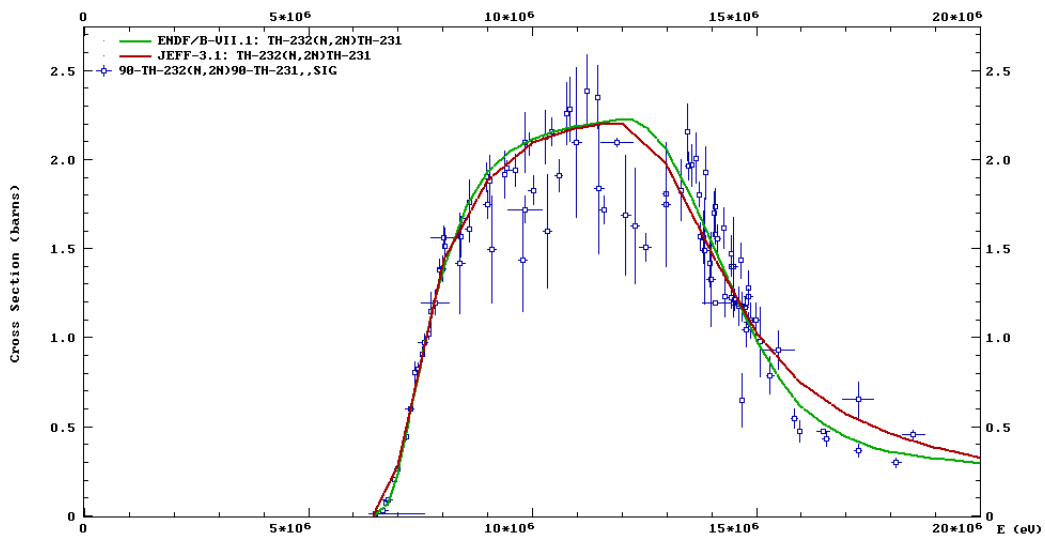


FIGURE 3.10 – Section efficace $^{232}\text{Th}(n, 2n)$

3.3.4.1 Écarts entre JEFF-3.1 et ENDF-7.1

La simulation d'un combustible $(Th, U)O_2$ à 3.55 % d'uranium en REP utilisant la base JEFF-3.1 présente un inventaire en ^{232}U à la fin de l'irradiation de 10.6 % inférieur à celui calculé en utilisant ENDF-7.1. Ceci provient ; d'une part, du fait que la section efficace moyenne $\langle \sigma_{(n,\gamma)}^{231Pa} \rangle$ est plus grande avec la base ENDF, et d'autre part que la section efficace moyenne $\langle \sigma_{(n,\gamma)}^{232Th} \rangle$ est plus petite. $\langle \sigma_{(n,\gamma)}^{232Th} \rangle$ plus petite signifie une moins bonne régénération du noyau fissile avec ENDF. Donc une quantité d' ^{233}U moins importante avec ENDF. De plus, parce que $\langle \sigma_{(n,f)}^{233U} \rangle$ ne varie pas avec le changement de base, le flux doit être plus élevé afin que la puissance demeure constante. Sachant cela, il vient que comme $\langle \sigma_{(n,2n)}^{232Th} \rangle$ ne varie pas avec le changement de base le taux de production de ^{231}Pa est plus important avec ENDF. Ainsi les trois termes du taux de production de l' ^{232}U (N_{231Pa} , $\langle \sigma_{(n,\gamma)}^{231Pa} \rangle$ et $\langle \phi \rangle$) sont plus élevés avec ENDF7.1.

Erreur statistique La même simulation a été réalisé 50 fois en changeant la graine du générateur de nombre aléatoire de MCNP, l'écart type sur la moyenne des 50 inventaires d' ^{232}U estime l'erreur relative. On obtient 0.43% d'erreur relative à la fin de l'irradiation.

3.3.5 Conclusion

La synthèse d' ^{232}U en combustible ThU provient à 99 % de la voie $^{232}Th(n, 2n)^{231}Pa(n, \gamma)^{232}U$. L'équilibre en ^{232}U n'étant pas atteint, la quantité d' ^{232}U (en $g/tMLi$) croît avec le taux de combustion. Cette quantité varie de façon quasi-linéaire avec la teneur sur l'intervalle [3%-4%] (environ $(40g/tMLi)/\%$), si bien que normalisée à l'énergie électrique produite la quantité d' ^{232}U ne varie pas avec la teneur en ^{233}U . La quantité d' ^{232}U dans le cycle ne dépend pas de la teneur (ou, ce qui revient au même, du taux de combustion maximum atteignable)

Pour un même taux de combustion, un combustible plus riche en ^{233}U produit moins d' ^{232}U car la quantité du précurseur, le ^{232}Th , est plus faible mais surtout car le flux et la section efficace $^{231}Pa(n, \gamma)$ sont inférieurs.

Le minerai de thorium pouvant être mêlé à l'uranium, le thorium contient alors du ^{230}Th (décroissance de l' ^{234}U). Cependant, sa présence n'entraîne qu'une surproduction limitée d' ^{232}U par la voie $^{230}Th(n, \gamma)^{231}Pa(n, \gamma)^{232}U$. En effet pour un minerai contenant (en masse) autant d'uranium que de thorium l'augmentation n'est que de

5.0 %.

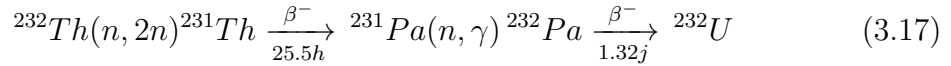
Au vue de la valeur de sensibilité à la production d' ^{232}U de la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ (cf. section 3.3.4) et du peu de données expérimentales disponibles (une seule mesure à 0.025 eV), la mesure de cette section efficace serait d'un grand intérêt pour prédire avec plus de précision la production de l'indésirable ^{232}U . De même, la section efficace de capture de l' ^{232}U est complètement inconnue (calculée par modèle optique) or son influence sur la production d' ^{232}U pourrait s'avérer importante dans le cas du multi-recyclage de l'uranium.

L' écart entre les bases JEFF et ENDF sur la production d' ^{232}U est de 10.6 %. Cet écart provient des différences sur les sections efficaces $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ et $^{232}\text{Th}(n, \gamma)$ (cf. section 3.3.4.1).

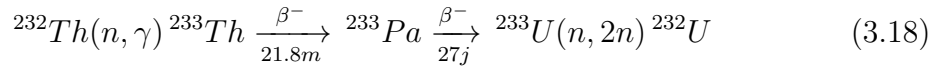
3.4 Combustible ThPu

Les voies de production identifiées pour ce combustible sont les suivantes :

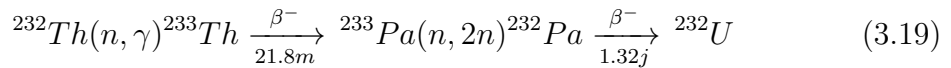
Voie $^{232}\text{Th}(n, 2n)$:



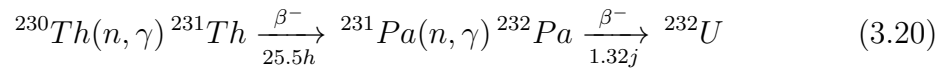
Voie $^{233}\text{U}(n, 2n)$:



Voie $^{233}\text{Pa}(n, 2n)$:



Si de l'uranium est présent dans le minerai de thorium : Voie $^{230}\text{Th}(n, \gamma)$:



Au regard de ce qui a été montré pour les autres combustibles, à savoir que, le plutonium n'est responsable que d'une faible partie de la production d' ^{232}U en combustible MOX (cf. 3.2), et que la voie $^{232}\text{Th}(n, 2n) \dots ^{231}\text{Pa}(n, \gamma) \dots ^{232}\text{U}$ est responsable de 99% de la synthèse d' ^{232}U en combustible ThU (cf. 3.3), on peut, sans prendre trop de risque, affirmer que la création d' ^{232}U en combustible ThPu ne dépendra que de cette voie. Le tableau 3.26 indique la quantité d' ^{232}U produite par les différentes

3.4. COMBUSTIBLE THPU

voies liées à la présence de thorium, ainsi que la quantité totale d' ^{232}U . Ce tableau montre clairement que seule la voie 3.17 ($^{232}\text{Th}(n, 2n) \dots ^{231}\text{Pa}(n, \gamma) \dots ^{232}\text{U}$) participe, de façon importante, à la synthèse d' ^{232}U . Le vecteur isotopique du plutonium est renseigné dans le tableau 3.28, le thorium est du ^{232}Th pur. Ce combustible est à 11% (molaire) de plutonium, ce qui permet d'atteindre un taux de combustion de 55GWj/tMLi .

Tableau 3.26 – Production d' ^{232}U par les différentes voies (55GWj/tMLi)

Voies	Prod. ^{232}U (g/tMLi)
3.17 $^{232}\text{Th}(n, 2n)$	76.3
3.18 $^{233}\text{U}(n, 2n)$	0.46
3.19 $^{233}\text{Pa}(n, 2n)$	0.11
Total	77.2

Tableau 3.27 – Production d' ^{232}U (55GWj/tMLi) pour différentes normalisations. Comparaison avec le ThU

Prod. ^{232}U	ThU (3.55%)	ThPu
(g/tMLi)	94	76.9
(kg/GWe.an)	2.11	1.72
(% dans \vec{U})	0.39	0.43

La proportion de ^{232}Th est plus faible en combustible ThPu qu'en ThU. De plus, du fait de la présence du plutonium les sections efficaces de capture, et *a fortiori* $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$, sont dégradées (nous verrons cela plus en détails dans la section suivante). Ceci entraîne une synthèse (en g/tMLi) plus faible en combustible ThPu qu'en combustible ThU. Les taux de combustion étant identiques pour les deux combustibles, la production d' ^{232}U par unité d'énergie produite est plus faible en ThPu. La proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium est plus grande en combustible ThPu car la quantité totale d'uranium est, à l'issue de l'irradiation, plus faible en combustible ThPu.

3.4.1 Impact de la qualité du Plutonium

Le vecteur isotopique du plutonium varie de façon importante en fonction de, la technologie de réacteur utilisée pour le synthétiser, le taux de combustion, le temps

3.4. COMBUSTIBLE THPU

entre la fin de l'irradiation et la séparation chimique de l' UO_2 usé et le temps entre la séparation chimique et la mise en coeur. Selon le vecteur plutonium, la teneur en plutonium, nécessaire pour atteindre un taux de combustion donné, ne sera pas la même. Sachant cela, on peut intuitivement qu'un combustible ThPu dont le vecteur Pu est riche en noyaux fissiles et pauvre en noyaux stériles produira plus d' ^{232}U qu'un combustible dont le vecteur Pu est pauvre en noyaux fissiles. En effet, pour atteindre le même taux de combustion, la teneur du pauvre en noyaux fissiles sera plus faible, la quantité de ^{232}Th (principale précurseur de l' ^{232}U) plus grande, et finalement la quantité d' ^{232}U plus grande.

Afin de vérifier cette assertion, deux simulations, avec des vecteurs plutonium différents ont été effectuées. Un vecteur, noté "Pu Bon", provient de l'irradiation durant $7600MWj/tMLi$, en CANDU, d'uranium naturel, refroidi 3 ans avant séparation, puis deux ans avant la mise en coeur. Un autre vecteur, noté "Pu Mauvais" provient de l'irradiation durant $55GWj/tMLi$ d'un combustible MOX en REP sur-modérée (le calcul a été effectué à partir de la géométrie sur-modérée définie dans [Bar96]). Le tableau 3.28 donne les vecteurs plutonium de ces combustibles ainsi que les teneurs nécessaires pour atteindre un taux de combustion de $55GWj/tMLi$.

Tableau 3.28 – Composition isotopique du combustible MOX

Isotopes	Pu bon	Pu mauvais (% mol.)
^{238}Pu	2.7	4.2
^{239}Pu	67.4	33.3
^{240}Pu	25.9	33.2
^{241}Pu	7.4	13.6
^{242}Pu	7.3	14.0
^{241}Am	0.7	1.4
teneur(% mol.)	7.5	18.2

3.4. COMBUSTIBLE THPU

Tableau 3.29 – Production d' ^{232}U ($55GWj/tMLi$)

^{232}U	Mauvais	"Moyen 2025"	Bon
$g/tMLi$	59.0	76.9	92.1
$kg/(GW_{e.an})$	1.32	1.72	2.06
% dans \vec{U}	0.35	0.43	0.5
Qualité du \vec{Pu} (%)	46.9	63.4	74.8
$Q = \frac{\sum_{fissile} N_{Pu_{fissile}}}{N_{Pu_{TOTAL}}}$			

Comme l'indique le tableau 3.29, plus le vecteur plutonium est "bon", plus la quantité d' ^{232}U produite est importante. Cependant, il s'avère que ce fait n'est dû, qu'en partie, à un inventaire plus ou moins important en ^{232}Th , l'effet principal provient d'une modification du spectre. En effet, les sections efficaces des plutonium possèdent des résonances élevées proches de la zone thermique (cf. figure 3.11) qui ont un impact important sur la bosse thermique du spectre. On peut pour s'en convaincre se référer à la figure 3.12 qui représente le spectre neutronique dans un REP chargé avec ces combustibles. Ainsi plus la quantité de plutonium est importante, plus la bosse thermique est faible. Cela impacte négativement les sections efficaces moyennes de capture et, a fortiori, la section efficace moyenne $^{231}Pa(n, \gamma)$. À l'inverse les sections efficaces moyennes (n,2n) sont plus importantes pour du "bon" plutonium. En effet, pour rappel (cf. section 1.4.2) on a :

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\int \sigma \phi dE}{\int \phi dE}$$

Le numérateur est le même quelque soit le plutonium pour les réactions (n,2n) (réactions à seuils). En revanche, dû fait des résonances des isotopes du plutonium, le flux est plus petit pour un "mauvais" plutonium, ainsi $\langle \sigma \rangle$ est plus grand.

3.4. COMBUSTIBLE THPU

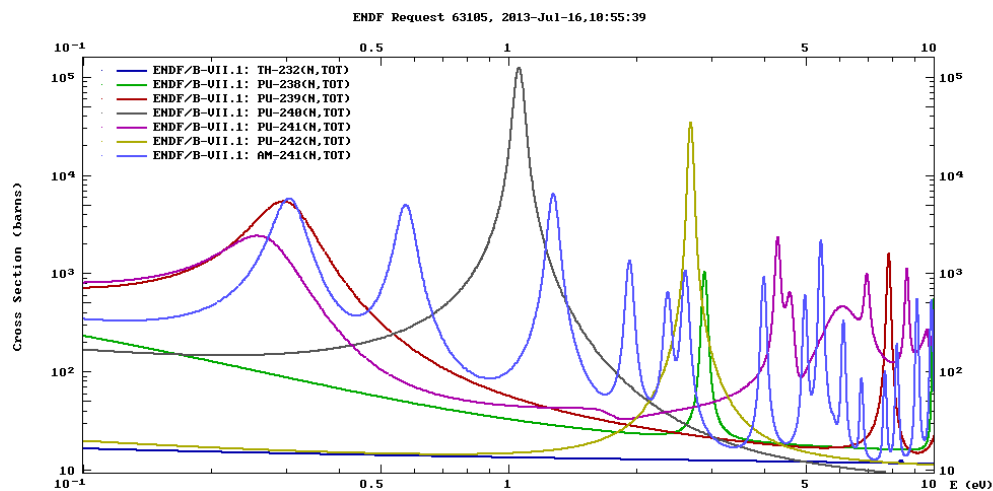


FIGURE 3.11 – Sections efficaces des noyaux présents dans le combustible à $t=0$ (région thermique)

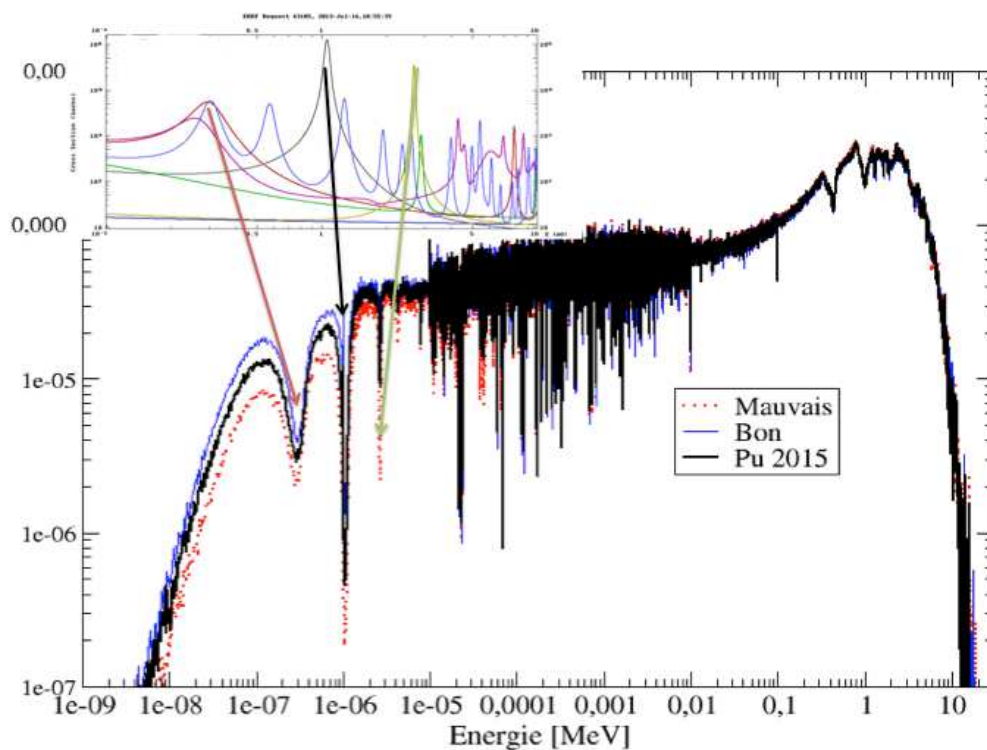


FIGURE 3.12 – Spectres neutroniques des différents plutonium utilisés (au début de l'irradiation)

3.4. COMBUSTIBLE THPU

Le tableau 3.30 représente les variations du flux des sections efficaces moyennes et des inventaires liés à la synthèse d' ^{232}U , entre le mauvais et le bon plutonium au début de l'irradiation (9000 MWj/tMLi). Il en ressort assez clairement que l'écart sur la production d' ^{232}U entre les deux évolutions provient de l'écart sur la section efficace moyenne du $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$.

Tableau 3.30 – Écarts entre les simulations (Bon et Mauvais plutonium) sur les taux de réaction $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$

	$N_{^{232}\text{Th}}$	$< \sigma_{^{232}\text{Th}}(n, 2n) >$	$< \phi >$	Taux de Réaction ¹
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{\text{Bon}}}{X_{\text{Mauvais}}} - 1$ à $t=9\text{GWj/tMLi}$	11	-7	3	6
	$N_{^{231}\text{Pa}}$	$< \sigma_{^{231}\text{Pa}}(n, \gamma) >$	$< \phi >$	Taux de Réaction
$\frac{\Delta X}{X} = \frac{X_{\text{Bon}}}{X_{\text{Mauvais}}} - 1$ à $t=9\text{GWj/tMLi}$	2	45	3	52

3.4.2 Impact du Thorium utilisé

Étant donné la conclusion de la section 3.3.2, on peut s'attendre, comme pour le combustible ThU, à ce que l'impact de l'uranium dans le minéral de thorium sur la production d' ^{232}U soit faible. Comparons, entre un combustible ThU et ThPu, les probabilités pour qu'un noyau de ^{230}Th deviennent, à l'issue de l'irradiation, un noyau d' ^{232}U (ie comparons les $N_{^{230}\text{Th}}^+(t=55\text{GWj/tMLi})$) (cf. tableau 3.31 :

Tableau 3.31 – Comparaisons des $N_{^{230}\text{Th}}^+(t=55\text{GWj/tMLi})$

	ThU (3.55%)	ThPu (11%)
$N_{^{230}\text{Th}}^+(t=55\text{GWj/tMLi})$	0.291	0.171

Le tableau 3.31 montre que l' ^{232}U produit par le ^{230}Th l'est plus facilement en combustible ThU. En effet à cause de la présence du plutonium les sections efficaces moyennes de captures sont réduites en ThPu, et a fortiori, les sections efficaces $^{230}\text{Th}(n, \gamma)$ et $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$. Pour cette même raison, à taux de combustion égaux, le ThU synthétise plus ^{232}U que le ThPu. A titre d'illustration le tableau 3.32 compare

$$1. \frac{\Delta R}{R} = \frac{\Delta N}{N} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi} + \frac{\Delta N}{N} \frac{\Delta \sigma}{\sigma} \frac{\Delta \phi}{\phi}$$

3.4. COMBUSTIBLE THPU

la production d' ^{232}U en combustible ThU et ThPu pour différents rapports $\frac{U}{Th}$ (masse d'uranium sur masse de thorium dans le minerai)

Tableau 3.32 – Production d' ^{232}U selon le minerai de thorium

$\frac{U}{Th}$	ThU	ThPu (11%)
0	94.35	76.68
0.04	94.54	76.78
0.1	94.82	76.94
0.2	95.29	77.19
0.5	96.71	77.96
1	99.06	79.23

Dans les deux cas, l'impact du minerai de thorium utilisé est très faible. A la limite de la dénomination "minerai de thorium", c'est à dire pour un rapport $\frac{U}{Th}$ égale à un, l'augmentation de la production d' ^{232}U n'est que de 3.3% pour le ThPu et de 5.0% pour le ThU.

3.4.3 Résumé des résultats

- Comme pour le combustible ThU , la synthèse d' ^{232}U provient presque exclusivement de la voie $^{232}\text{Th}(n, 2n)^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$
- La présence du plutonium détériore les sections efficaces de capture (et donc $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$) comparativement au ThU. De plus la proportion de thorium est plus faible en ThPu. Ainsi la production d' ^{232}U est plus faible en ThPu qu'en ThU à la fois dans le cycle, et par tMLi.
- Par contre, la quantité totale d'uranium à la fin de l'irradiation étant plus faible en combustible ThPu, la proportion d' ^{232}U y est légèrement plus grande : 0.43% contre 0.39 % en ThU.
- Plus la qualité du vecteur plutonium est importante plus la production d' ^{232}U est grande et ce pour toutes les normalisations. Ainsi la proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium est multiplié par 1.43 entre le bon et le mauvais plutonium.
- L'influence du minerai de thorium utilisé sur l'inventaire en ^{232}U est faible : majoration de 3.3 % pour un ratio (en masse) $\frac{U}{Th}$ dans le minerai égale à un.

3.5. CONCLUSION GÉNÉRALE SUR LA PRODUCTION D' ^{232}U EN REP

3.4.4 Conclusion

Comme pour le combustible ThU, la synthèse de l' ^{232}U dépend presque exclusivement de la voie $^{232}\text{Th}(n, 2n) \dots ^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$. Selon la qualité du plutonium (proportion de noyaux fissiles) la production d' ^{232}U varie. Les résonances des sections efficaces du ^{240}Pu et ^{242}Pu détériorent la bosse thermique du flux neutronique si bien que plus la qualité du plutonium est mauvaise (et donc plus la proportion de ces noyaux est importante) plus les sections efficaces moyennes de captures sont faibles et à fortiori la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$. Ainsi l'utilisation d'un plutonium de mauvaise qualité limite la production d' ^{232}U . L'impact du type de minerai de thorium utilisé est encore plus faible que pour le cas du combustible ThU et représente une augmentation de la production d' ^{232}U de 3.3% (contre 5 % pour le ThU) lors de l'utilisation d'un thorium provenant d'un minerai contenant autant (en masse) d'uranium que de thorium.

3.5 Conclusion générale sur la production d' ^{232}U en REP

En guise de conclusion, le tableau 3.33 résume le travail effectué sur la production d' ^{232}U en REP.

Tableau 3.33 – Tableau de conclusion sur la synthèse en REP

Combustible :	UO_2	URTe	MOX	ThU	ThPu
Tx de comb. (GWj/tMLi) :	55	40	55	55	55
Teneur en élément fissile (%)	4.3	3.567	10.1	3.55	11
Prod. ^{232}U (*mg)g/tMLi	5.0*	10*	1.1*	94	77
(*g)kg/(GWe.an)	111 *	313*	36*	2.11	1.72
(*ppb) % dans \vec{U}	5.51*	11.1*	1.94*	0.39	0.43
Minerai de thorium Majoration (%) pour $\frac{U}{Th} = 1$	-	-	-	5.0	3.3
Temps purification -irradiation	10 (% .an ⁻¹)	-	5.6* ¹	-	-
Enrichissement/teneur *(mg)g/tMLi/%	35*	-	-	40	-

*¹ Augmentation pour un plutonium contenant 120 ppm de ^{237}Np issue de la décroissance de l' ^{241}Am

3.5. CONCLUSION GÉNÉRALE SUR LA PRODUCTION D' ^{232}U EN REP

Explication du tableau

- Minerai de thorium : Majoration de la production d' ^{232}U ($g/tMLi$ ou $kg/(GWe.an)$) entre un vecteur thorium à 100% de ^{232}Th et un vecteur contenant du ^{230}Th tel que le minerai de thorium était composé à part égale (en masse) d'uranium et de thorium ($\frac{U}{Th} = 1$).
- Temps purification-irradiation :
 - Pour l' UO_2 : Majoration de la production d' ^{232}U ($g/tMLi$ ou $kg/(GWe.an)$) causée par le temps de latence séparant la purification du minerai d'uranium de la mise en coeur du combustible.
 - Pour le MOX : Majoration de la production d' ^{232}U ($g/tMLi$ ou $kg/(GWe.an)$) causée par le temps de latence séparant l'extraction du plutonium du combustible utilisé de la mise en coeur du combustible.
- Enrichissement/teneur : Variation de la quantité d' ^{232}U pour une augmentation de 1 % de l'enrichissement/teneur (UO_2/ThU), et donc du taux de combustion maximum.

3.5. CONCLUSION GÉNÉRALE SUR LA PRODUCTION D' ^{232}U EN REP

Chapitre 4

Comparaison inter-filières

Ce chapitre vise à comparer, par combustible, la production d' ^{232}U dans différents systèmes nucléaires. Trois systèmes ont été simulés : CANDU, REP, RNR-Na. Les taux de combustion sont respectivement de 7.6 GWj/tMLi, 55 GWj/tMLi et 100 GWj/tMLi. Les teneurs en éléments fissiles ont été déterminées en utilisant la méthode définie en 2.1.1 et en 2.1.3.3. Les taux de combustion étant différents pour chaque système, les inventaires seront également donnés par unité d'énergie électrique produite, c'est à dire par GWe.an (Giga Watt électrique an), en prenant le même facteur de charge pour tous les réacteurs (85%), et un rendement de 33% pour le CANDU et le REP, et de 40% pour le RNR. Un GWe.an est l'ordre de grandeur de la production d'énergie électrique produite par un réacteur au cours d'une année.

4.1 Combustible ThU

Dans cette section sont comparés les inventaires d' ^{232}U à l'équilibre pour les 3 technologies. L'équilibre, est basé sur un modèle simple qui ne prend pas en compte les temps entre la fin de l'irradiation, la séparation chimique, la fabrication, et la mise en réacteur du combustible pour le cycle suivant. Le scénario aboutissant à cet équilibre est très simple : l'uranium issu de l'irradiation à chaque cycle est recyclé pour le cycle suivant dans la même technologie de réacteur. Dans un second temps les inventaires à l'issue du premier cycle sont comparés.

4.1.1 Inventaires à l'équilibre

Il est question ici d'étudier les inventaires en ^{232}U à l'équilibre pour le CANDU, le REP et le RNR, dont les teneurs en ^{233}U sont respectivement de 1.3%, 3.55% et 10.3% permettant d'atteindre un taux de combustion maximum de 7.6, 55 et 100 $\text{GWj}/t\text{MLi}$. Pour rappel, la principale voie de production de l' ^{232}U en combustible ThU est : $^{232}\text{Th}(n, 2n)^{231}\text{Th} \rightarrow ^{231}\text{Pa}(n\gamma)^{232}\text{Pa} \rightarrow ^{232}\text{U}$. Le système d'équations, pour l'évolution de l' ^{232}U s'écrit, en négligeant les réactions sur le ^{232}Pa et la destruction du ^{232}Th , et en supposant la décroissance du ^{231}Pa instantanée :

$$\begin{aligned}\frac{dPa}{dt} &= Th \langle \sigma_{Th(n,2n)} \rangle \langle \phi \rangle - Pa \langle \sigma_{Pa(n,abs)} \rangle \langle \phi \rangle \\ \frac{dU}{dt} &= Pa \langle \sigma_{Pa(n,\gamma)} \rangle \langle \phi \rangle - U (\langle \sigma_{U(n,abs)} \rangle \langle \phi \rangle + \lambda_U)\end{aligned}$$

En faisant l'approximation que le flux et les sections efficaces sont constantes, la solution pour U est :

$$U(t) = \frac{Th \sigma_{Th(n,2n)} \sigma_{Pa(n,\gamma)}}{\sigma_{Pa(n,abs)} (\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})} \left(1 - \frac{\sigma_{Pa(n,abs)} e^{-((\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})\phi t)} - (\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}) e^{-(\sigma_{Pa(n,abs)}\phi t)}}{\sigma_{Pa(n,abs)} - (\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})} \right) \quad (4.1)$$

Celle pour Pa est :

$$Pa(t) = \frac{Th \sigma_{Th(n,2n)}}{\sigma_{Pa(n,abs)}} (1 - e^{-(\sigma_{Pa(n,abs)}\phi t)}) \quad (4.2)$$

Où les $\langle \rangle$ ont été retirés pour plus de clarté. Avec le temps t en secondes, converti en taux de combustion (BU) par : $t = \frac{t\text{MLi} \cdot (3600 \cdot 24)}{\text{Puissance}} \cdot \text{BU}$. Les termes devant les parenthèses des équations 4.1 et 4.2 représentent respectivement les inventaires à l'équilibre d' ^{232}U et de ^{231}Pa , notés par la suite U_{eq} et Pa_{eq} . Le tableau 4.1 donne ces inventaires ainsi que les taux de combustion nécessaires pour les atteindre (l'équilibre est considéré atteint lorsque $U(t) = 0.99U_{eq}$). L'équilibre de la production d' ^{232}U est atteint pour des taux de combustion élevés où le réacteur n'est plus critique, ce qui n'est physiquement pas pertinent. Cependant, ces temps de mises à l'équilibre donnent une estimation basse du nombre de cycles nécessaire pour atteindre l'équilibre dans le cas d'un multi-recyclage de l'uranium sur matrice thorié (cf. Nbr. Cycles, tableau 4.1). L'estimation est qualifiée de basse car, lors de chaque cycle du multi-recyclage, l'inventaire en ^{231}Pa est remis à zero. De plus, l' ^{232}U décroît entre la sortie du réacteur, la séparation chimique, la fabrication et la mise en coeur du

4.1. COMBUSTIBLE THU

nouveau combustible, et il est incinéré au début de chaque cycle. Par conséquent, l'inventaire à l'équilibre est, en réalité, atteint plus tardivement que ne l'indique le tableau 4.1.

Tableau 4.1 – Inventaires à l'équilibre

Réacteur	U_{eq} $g/tMLi$	Pa_{eq} $g/tMLi$	$T_{eq}^{232}U$ $GW_j/tMLi$	Nbr. Cycles
CANDU	92.4	53.0	220	30
REP	215	96.8	340	6
RNR	536	880	1000	10

Pour rappel : $Pa_{eq} = \frac{Th \sigma_{Th(n,2n)}}{\sigma_{Pa(n,abs)}}$ et $U_{eq} = Pa_{eq} \frac{\sigma_{Pa(n,\gamma)}}{(\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})}$

$$U_{eq} = Th \left(\frac{\sigma_{Pa(n,\gamma)}}{\sigma_{Pa(n,abs)}} \right) \left(\frac{\sigma_{Th(n,2n)}}{(\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})} \right) \quad (4.3)$$

Le tableau 4.2 donne les sections efficaces moyennes sur l'irradiation du premier cycle intervenant dans les équations précédentes ainsi que chaque terme de l'équation 4.3. On a donc fait l'hypothèse que le multi-recyclage de l' ^{233}U n'a pas "trop" d'impact sur la forme du spectre neutronique. Il ressort de ce tableau que les écarts entre les différents réacteurs sur la production d' ^{232}U à l'équilibre proviennent, presque exclusivement, des écarts sur le rapport $\frac{\sigma_{232Th(n,2n)}}{\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}}$. On peut conclure de ce tableau que le RNR produit plus d' ^{232}U à l'équilibre car son terme de destruction de l' ^{232}U (ie $\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}$) est environ dix fois plus faible que les autres. Le CANDU produit moins d' ^{232}U que le REP car sa section efficace $\sigma_{232Th(n,2n)}$ est environ deux fois plus faible.

Tableau 4.2

Réacteur		$\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,abs)}$ barn	$\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,\gamma)}$ barn	$\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}$ barn	$\sigma_{^{232}\text{Th}(n,2n)}$ mbarn
CANDU		45.1	45.0	26.7	2.6
REP		54	53.7	23.9	5.5
RNR		1.52	1.34	2.21	1.6
	% ^{232}Th	$\frac{\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,\gamma)}}{\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,abs)}}$		$\frac{\sigma_{^{232}\text{Th}(n,2n)}}{\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}}$	
CANDU	98.7	0.998		$9.7 \cdot 10^{-5}$	
REP	96.5	0.994		$2.3 \cdot 10^{-4}$	
RNR	89.7	0.882		$7.2 \cdot 10^{-4}$	

Remarque sur la section efficace moyenne $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,\gamma)}$. Bien que le flux du CANDU soit plus thermique que le REP, sa section efficace $^{231}\text{Pa}(n,\gamma)$ moyenne est plus petite (cf. tableau 4.2). En effet la section efficace $^{231}\text{Pa}(n,\gamma)$ présente une résonance aux alentours 0.4 eV, dans une région où le nombre de neutrons est plus important en REP. Plus exactement, c'est $\chi(E) = \frac{\phi(E)}{\int \phi(E)}$ qui est plus important, pour le REP, dans cette région. Pour s'en convaincre, le lecteur peut se référer à la figure 4.1. Cet histogramme représente la partie thermique des deux spectres dont le découpage en groupe d'énergies est celui utilisé par MURE. Ces portions de spectres sont données pour un neutron présent dans le combustible. Il est clair, qu'à l'endroit de la résonance, $\chi(E)$ est plus important pour le REP. Or on a $\langle \sigma \rangle = \int \chi(E)\sigma(E)$, par conséquent $\langle \sigma \rangle_{^{231}\text{Pa}(n,\gamma)}$ est plus grand pour le REP.

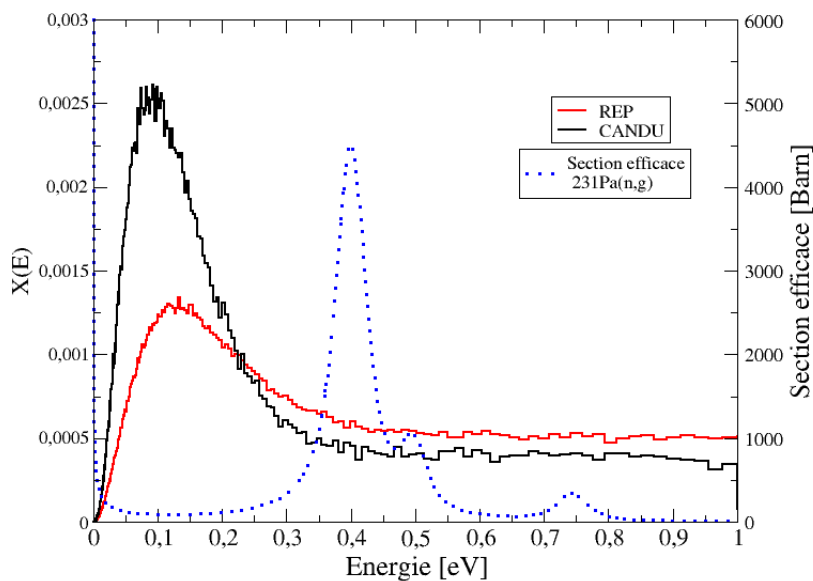


FIGURE 4.1 – Parties thermiques des spectres du REP et du CANDU superposés à $\sigma^{231Pa(n,\gamma)}$

4.1.2 Inventaires au premier cycle

Le tableau 4.3 fait figurer la production d' ^{232}U , pour chaque réacteur à leurs taux de combustion maximum, pour différentes normalisations.

Tableau 4.3 – Production d' ^{232}U selon la technologie de réacteur $t=t_{max}$

Réacteur	$g/tMLi$	$kg/(GWe.an)$	$\%(mol.)^{232}U^*$
CANDU ($7.6GWj/tMLi$)	2.74	0.448	0.018
REP ($55GWj/tMLi$)	94.7	2.11	0.39
RNR ($100GWj/tMLi$)	99.7	1.07	0.090

* Pourcentage molaire d' ^{232}U dans le vecteur uranium

Il a été démontré dans la sous-section précédente que, à l'équilibre, l'inventaire en ^{232}U est supérieur pour le RNR, cependant la mise à l'équilibre est si lente pour ce réacteur que l'inventaire est voisin de celui du REP, à leurs taux de combustion maximaux respectifs (cf. figure 4.2). Le taux de combustion étant deux fois plus grand pour le RNR et l'inventaire en $g/tMLi$ semblable il vient que la quantité

4.1. COMBUSTIBLE THU

d' ^{232}U par unité d'énergie électrique produite est deux fois plus faible en RNR (cf. tableau 4.3).

Pourquoi la mise à l'équilibre est si lente en RNR ?

Il faut se rappeler du tableau 4.2, qui montre que, contrairement aux autres réacteurs, le RNR possède une section efficace $\sigma_{^{232}\text{U}(n,abs)}$ supérieure à $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,abs)}$ si bien que la production d' ^{232}U met plus de temps à "décoller". En effet, comme l'atteste la courbe 4.3, le rapport des taux de réaction $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ sur $^{232}\text{U}(n, abs)$ est beaucoup plus faible pour le RNR, notamment aux faibles taux de combustion.

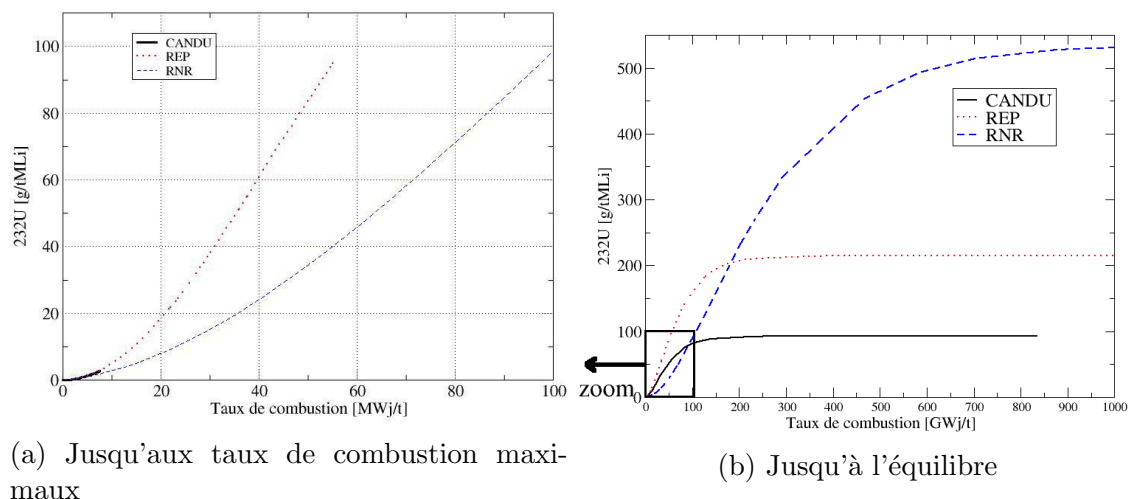


FIGURE 4.2 – Inventaires d' ^{232}U au cours de l'irradiation

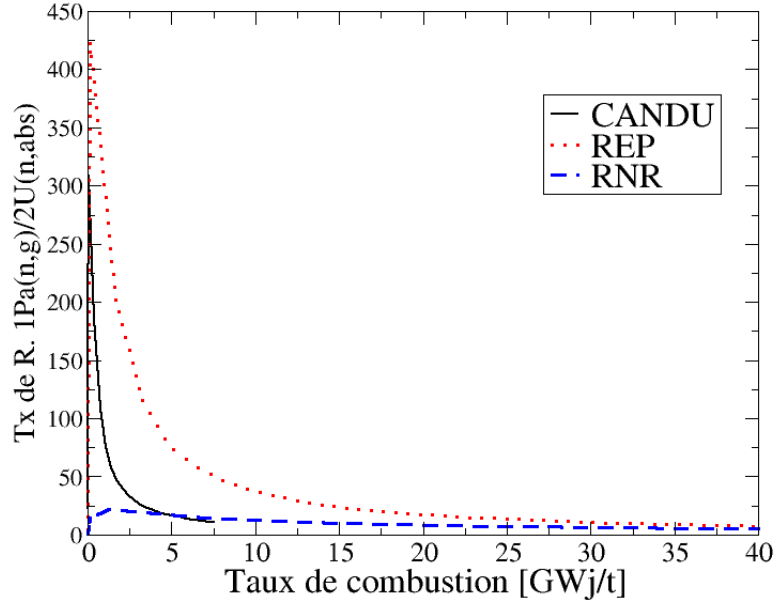


FIGURE 4.3 – Rapports des taux de réactions $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ sur $^{232}\text{U}(n, \text{abs})$ pour les trois systèmes

Du fait de son faible taux de combustion, la production du CANDU à 7.6 GWj/tMLi est faible. De plus, aux faibles taux de combustion la production d' ^{232}U croît rapidement, avant de devenir plus ou moins linéaire (cf. 4.2a), si bien que, comme à 7.6 GWj/tMLi la production du CANDU n'a pas encore atteint cette croissance rapide, il vient que même ramené à la puissance électrique produite, le CANDU reste le réacteur qui synthétise le moins d' ^{232}U . Même pour un taux de combustion identique (7.6 GWj/tMLi), le REP produit plus d' ^{232}U que le CANDU, en effet, la section efficace $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ est deux fois plus faible en CANDU, et la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ 20% plus petite (le flux 15 % plus grand).

^{232}U dans le vecteur uranium La proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium est plus importante en REP, ceci est dû à une synthèse plus importante d' ^{232}U et à une moindre régénération de l' ^{233}U . En effet, en CANDU, le faible taux de combustion ainsi que la plus grande quantité de neutrons disponibles (beaucoup moins de captures sur le modérateur que dans le cas du REP) permet d'atteindre des taux de régénération bien plus élevé ($\frac{M_{\text{fissile}}(t=\text{fin})}{M_{\text{fissile}}(t=0)} \sim 1$ pour le CANDU, ~ 0.5 pour le REP). De même, en RNR, le plus grand nombre de neutron par fission, ainsi

4.2. COMBUSTIBLE THPU

qu'un rapport $\frac{\sigma_{capt}}{\sigma_{fission}}$ du noyau fissile plus faible, autorise une excellente régénération ($\frac{M_{fissile}(t=fin)}{M_{fissile}(t=0)} \sim 0.95$). En guise d'illustration le tableau 4.4 donne le vecteur uranium à l'issue de l'irradiation pour ces trois systèmes (le ^{233}Pa est compté comme étant de ^{233}U).

Tableau 4.4 – Composition du vecteur uranium à l'issu de l'irradiation

Isotope	CANDU(7.6GWj/tMLi)	REP(55GWj/tMLi)	RNR(100GWj/tMLi)
	Pourcentage molaire (%)		
^{232}U	0.018	0.39	0.09
^{233}U	94.15	72.53	88.90
^{234}U	5.48	21.53	10.28
^{235}U	0.34	4.59	0.68
^{236}U	0.014	0.96	0.05

4.2 Combustible ThPu

L'uranium 232 est produit, en combustible ThPu, par la même voie de synthèse qu'en combustible ThU. Il semble alors raisonnable d'utiliser le même modèle que précédemment, rappelé ici par l'équation 4.4. Cependant, le plutonium a un impact important sur la partie thermique du spectre neutronique (cf. 3.4.1), ce qui a une influence notable sur les sections efficaces de capture (et *a fortiori* sur $\sigma_{^{231}Pa(n,\gamma)}$). En effet, il ressort du tableau 4.5, qui référence les valeurs de sections efficaces moyennes liées à la production d' ^{232}U , que, contrairement au combustible ThU (cf. 4.2.1), la section efficace moyenne $\sigma_{^{231}Pa(n,\gamma)}$ est plus importante en REP qu'en CANDU. De plus, les sections efficaces de capture sont plus faibles, pour ces deux réacteurs, en ThPu qu'en ThU. En revanche les sections efficaces du RNR sont peu sensibles à la présence du plutonium (cf. tableaux 4.2 et 4.5).

4.2. COMBUSTIBLE THPU

Tableau 4.5 – Sections efficaces relatives à la production d' ^{232}U

Réacteur		$\sigma_{1Pa(n,abs)}$ barn	$\sigma_{1Pa(n,\gamma)}$ barn	$\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}$ barn	$\sigma_{2Th(n,2n)}$ mbarn
CANDU (7.6GWj/tMLi)		31.2	31.0	23	3.5
REP (55GWj/tMLi)		22.8	22.5	16.1	7.6
RNR (100GWj/tMLi)		1.55	1.34	2.19	1.9
	$\%^{232}\text{Th}$	$\frac{\sigma_{1Pa(n,\gamma)}}{\sigma_{1Pa(n,abs)}}$		$\frac{\sigma_{2Th(n,2n)}}{\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}}$	
CANDU	97.56	0.993		$1.5 \cdot 10^{-4}$	
REP	89.00	0.987		$4.7 \cdot 10^{-4}$	
RNR	83.30	0.865		$8.7 \cdot 10^{-4}$	

4.2.1 Inventaires à l'équilibre

L'équilibre ici est atteint en multi-recyclant le plutonium et l'uranium. Pour rappel l'évolution de l' ^{232}U s'écrit moyennant quelques approximations (décrites dans la section précédente) :

$$U(t) = U_{eq} \left(1 - \frac{\sigma_{Pa(n,abs)} e^{-((\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})\phi t)} - (\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}) e^{-(\sigma_{Pa(n,abs)}\phi t)}}{\sigma_{Pa(n,abs)} - (\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})} \right) \quad (4.4)$$

avec U_{eq} l'inventaire à l'équilibre :

$$U_{eq} = Th \left(\frac{\sigma_{Pa(n,\gamma)}}{\sigma_{Pa(n,abs)}} \right) \left(\frac{\sigma_{Th(n,2n)}}{(\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi})} \right) \quad (4.5)$$

Le tableau 4.5 montre que les différences sur les inventaires en ^{232}U (tableau 4.6) des différents réacteurs proviennent, comme pour le combustible ThU, du rapport $\frac{\sigma_{2Th(n,2n)}}{\sigma_{U(n,abs)} + \frac{\lambda_U}{\phi}}$. À l'équilibre, le RNR produit plus d' ^{232}U car sa section efficace $\sigma_{^{232}\text{U}(n,abs)}$ est dix fois plus faible que les autres. Le CANDU en produit moins car sa section efficace $\sigma_{Th(n,2n)}$ est deux fois plus faible que celle du REP.

Tableau 4.6 – Inventaires à l'équilibre

Réacteur	U_{eq} g/tMLi	$T_{eq}^{232}\text{U}$ GWj/tMLi	Nbr. Cycles
CANDU	147	410	54
REP	405	510	9
RNR	575	970	10

Comparaison avec le combustible ThU À l'équilibre, le CANDU et le REP produisent plus d' ^{232}U en ThPu que en ThU, en se référant aux tableaux 4.5 et 4.2, il ressort que les sections efficaces de destruction de l' ^{232}U sont plus faible en ThPu et les sections efficace $^{232}\text{Th}(n, 2n)$ plus grande. Ainsi, le rapport $\frac{\sigma_{2\text{Th}(n, 2n)}}{\sigma_{\text{U}(n, \text{abs})} + \frac{\lambda_{\text{U}}}{\phi}}$ est plus important en ThPu, la production d' ^{232}U également. En revanche la production en RNR ne varie pas avec le combustible, du fait que ses sections efficaces sont peu sensibles à la présence du plutonium.

Remarque sur la section efficace moyenne $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}$. La figure 4.4 permet d'expliquer pourquoi la section efficace $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}$ est plus importante en CANDU. Cette figure représente, pour le cas ThU et ThPu, le spectre neutronique normalisé à un neutron présent dans le combustible ($\chi(E)$), en début d'irradiation, superposé à la section efficace de capture du ^{231}Pa . Contrairement au cas ThU, le spectre $\chi(E)$ du CANDU et du REP sont très proches au voisinage de la résonance du ^{231}Pa . En cause : une détérioration du spectre REP, à ces énergies, plus importante qu'en CANDU du fait d'un inventaire plus grand en ^{239}Pu et en ^{240}Pu . La différence entre les sections efficaces moyennes $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ des deux réacteurs provient, pour le cas ThPu, de la proportion de neutrons dans la bosse thermique. Cette dernière étant plus grande en CANDU, sa section efficace est plus grande. En ThU, la proportion de neutrons présents dans la gamme d'énergie de la résonance est supérieure en REP, d'où une section efficace moyenne plus grande pour ce dernier.

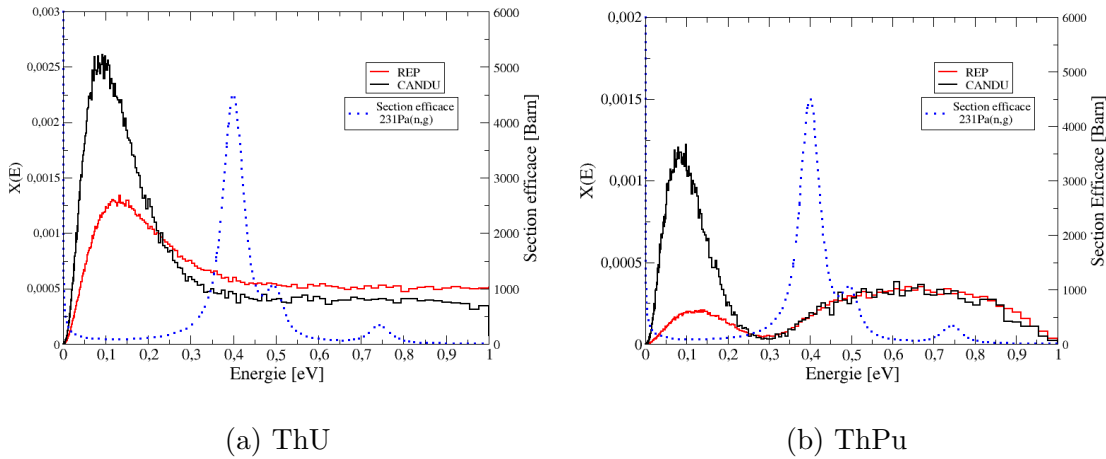


FIGURE 4.4 – Spectre neutronique du REP et du CANDU superposé à la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$

4.3. CONCLUSION

4.2.2 Inventaires au premier cycle, comparaisons au ThU

Le tableau 4.7 fait figurer la production d' ^{232}U , pour chaque réacteur à leur taux de combustion maximum (à la fin du premier cycle), pour différentes normalisations.

Tableau 4.7 – Production d' ^{232}U selon la technologie de réacteur 1^{er} cycle

Réacteur	$g/tMLi$	$kg/(GWe.an)$	$\%(mol.)^{232}\text{U}^*$
CANDU	2.39	0.391	0.046
REP	76.7	1.72	0.43
RNR	103	1.10	0.16

* Pourcentage molaire d' ^{232}U dans le vecteur uranium

Bien que la quantité d' ^{232}U soit plus grande à l'équilibre pour le combustible ThPu, elle est inférieure au ThU au premier cycle pour le REP et le CANDU. La montée à l'équilibre prend plus de temps en ThPu pour ces deux réacteurs. En effet les taux de réaction sont plus faibles, et les inventaires à l'équilibre plus élevés si bien que la "pente" est plus douce. Les taux de réactions, et surtout $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ sont plus faibles en ThPu car, si les flux sont assez proches entre ces deux combustibles, en revanche les sections efficaces de capture sont bien inférieures (presque un facteur 2 pour $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}$ en REP) et la quantité de ^{232}Th y est également moindre. Bien sûr, le taux de destruction de l' ^{232}U est également plus faible, mais son impact est beaucoup moins important car $\sigma_{^{232}\text{U}(n, abs)}N_{^{232}\text{U}}$ est, à ces taux de combustion, beaucoup plus faible que $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}N_{^{231}\text{Pa}(n, \gamma)}$.

Les sections efficaces et les flux étant très proches entre les deux combustibles pour le RNR, l'évolution de la quantité d' ^{232}U est semblable, la production en fin d'irradiation voisine (cf. tableaux 4.7 et 4.3).

En revanche la proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium est plus élevé en combustible ThPu, tout simplement car la quantité d' ^{233}U y est plus faible.

4.3 Conclusion

Aussi bien pour le ThU que pour le ThPu la quantité d' ^{232}U est, à l'équilibre, supérieure en RNR qu'en REP car la section efficace $^{232}\text{U}_{\sigma(n, abs)}$ est dix fois plus grande pour le REP. La quantité d' ^{232}U en CANDU est, à l'équilibre, inférieure à

4.3. CONCLUSION

celle du REP car sa section efficace $^{232}\text{Th}_{\sigma(n,2n)}$ est deux fois plus faible.

En revanche la montée à l'équilibre est lente pour le RNR (car pour le RNR, $\sigma_{^{232}\text{U}(n,abs)}$ est supérieur à $\sigma_{^{231}\text{Pa}(n,\gamma)}$) si bien que au bout du premier cycle la quantité en $g/tMLi$ d' ^{232}U en RNR est proche de celle en REP, et ce pour les deux combustibles. Ainsi ramené à la quantité d'énergie électrique produite la production d' ^{232}U est environ deux fois plus faible en RNR (taux de combustion de $100\text{GWJ}/tMLi$ contre $55\text{GWJ}/tMLi$ pour le REP).

Du fait de la lente évolution de la quantité d' ^{232}U aux faibles taux de combustion, le CANDU synthétise beaucoup moins d' ^{232}U que le REP au premier cycle.

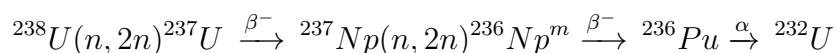
Conclusion de la première partie

Pour tous les combustibles étudiés, l'inventaire en ^{232}U n'atteint pas l'équilibre au bout de l'irradiation si bien que l'augmentation de la teneur en noyaux fissiles (qui permet d'augmenter le taux de combustion maximum atteignable) entraîne une augmentation de la production d' ^{232}U .

En combustible UO_2 comme en MOX les voies principales de synthèse de l' ^{232}U passent par la décroissance du ^{236}Pu ($T_{1/2} = 2.86$ ans) si bien que pour le combustible REP UO_2 (4.3%, 55GWj/tMLi) la quantité d' ^{232}U croît de plus d'un facteur 2 entre la fin de l'irradiation et après 12 ans de refroidissement. L'impact de l'enrichissement (et donc du taux de combustion maximum) sur les quantités d' ^{232}U est important : la quantité d' ^{232}U dans le cycle (*ie* en $\text{mg}/(\text{GWe.an})$) est triplée entre 3% et 5% d'enrichissement.

La décroissance de l' ^{234}U et de l' ^{235}U , dans l'intervalle de temps séparant la purification chimique du minerai d'uranium de la mise en réacteur du combustible UO_2 , entraîne l'apparition des impuretés : ^{230}Th et ^{231}Pa . Ces impuretés apportent une surproduction d' ^{232}U de 10 % par an séparant la purification de l'irradiation. Comparativement à un combustible UO_2 au même enrichissement et irradié au même taux de combustion la production d' ^{232}U est 4 fois plus importante en URTe à cause de la présence dans l'URTe, avant irradiation, d' ^{236}U et d' ^{232}U .

En combustible MOX la synthèse d' ^{232}U provient en grande partie de la voie



. Le plutonium n'est responsable que de 7 % de la production en fin d'irradiation. De ce fait la production d' ^{232}U est trois fois plus faible en combustible MOX qu'en UO_2 (pour le même taux de combustion). Un plutonium provenant du retraitement d'un combustible UO_2 ayant refroidi 3 ans avant séparation puis deux ans avant la fabrication contient environ 120ppm de ^{237}Np ce qui entraîne une majoration de la

4.3. CONCLUSION

production d' ^{232}U d'environ 5.6 % comparativement à un combustible MOX dont le plutonium ne contient pas, initialement, de ^{237}Np .

La synthèse en combustible Th^{233}U provient, comme pour le combustible ThPu , à plus de 99 % de la voie $^{232}\text{Th}(n, 2n)^{231}\text{Pa}(n, \gamma)^{232}\text{U}$. L'augmentation de la teneur en ^{233}U entraîne, sur l'intervalle [3%-4%] d' ^{233}U , une production de 40 g/tMLi/% d' ^{232}U . Pour le ThU (3.55%, 55 GWj/tMLi), la production d' ^{232}U est de 94 g/tMLi correspondant à une proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium de 0.39% contre 0.43% pour le ThPu (77 g/tMLi), 5.5 ppb pour l' UO_2 (5 g/tMLi), 1.94 ppb pour le MOX (1.1 g/tMLi).

Le minerai de thorium, souvent mêlé à l'uranium, contient du ^{230}Th (précurseur d' ^{232}U) issu de la chaîne de décroissance de l' ^{234}U . La quantité de ^{230}Th dans le vecteur thorium dépend du ratio $\frac{\text{Th}}{\text{U}}$ du minerai. Pour un ratio $\frac{\text{Th}}{\text{U}} = 1$ la surproduction d' ^{232}U est de seulement 5 %, l'impact du type de minerai de thorium utilisé pour la confection du combustible ThU est donc faible.

Pour le combustible ThPu, la qualité du plutonium influence la production d' ^{232}U (impact du plutonium sur la section efficace $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$). Ainsi, entre un bon et un mauvais plutonium, la production d' ^{232}U est multiplié par 1.43. Pour ce combustible l'impact du minerai de thorium utilisé est encore plus faible que pour le cas ThU et représente une augmentation de 3.3 % de la quantité d' ^{232}U (pour $\frac{\text{Th}}{\text{U}} = 1$).

Des études de sensibilités ont montré que la prédiction des inventaires en ^{232}U serait plus précise pour le combustible UO_2 si les sections efficaces $^{237}\text{Np}(n, 2n)$ et $^{236}\text{U}(n, \gamma)$ étaient connues plus précisément. Pour le combustible ThU la sensibilité du $^{231}\text{Pa}(n, \gamma)$ est importante et une seule mesure a été réalisée. Il serait intéressant de mesurer cette section efficace pour affiner les prédictions. De même, la section efficace $^{232}\text{U}(n, \gamma)$ est inconnue or sa sensibilité deviendra importante en cas de multi-recyclage du vecteur uranium. Sa mesure serait donc appréciable.

Les différences entre les bases de données entraînent des écarts importants sur la quantité d' ^{232}U en fin d'irradiation. Comparativement à JEFF3.1, l'utilisation de ENDFB7.1 implique une production d' ^{232}U 9 % plus importante (18 % pour le ^{236}Pu) en UO_2 et de 11 % supérieur pour le combustible ThU.

La comparaison de la production d' ^{232}U entre les filières REP, RNR et CANDU (cf. chapitre 4) a permis de montrer que le REP est le pire système quant à la synthèse d' ^{232}U , à l'issu du premier cycle, aussi bien en combustible ThU que ThPu. Le RNR tire son avantage de la lente évolution de l'inventaire jusqu'à l'équilibre et le CANDU de son faible taux de combustion. Pour les deux combustibles, l'inventaire d' ^{232}U à

4.3. CONCLUSION

l'équilibre est supérieur en RNR qu'en REP (car $\sigma_{232U(n,abs)}$ est dix fois plus faible que pour le REP), et inférieur en CANDU qu'en REP (car $\sigma_{232Th(n,2n)}$ est plus faible qu'en REP).

4.3. CONCLUSION

Deuxième partie

partie 2 : Impact du Thorium sur le cycle électro-nucléaire

Chapitre 5

Calcul des termes sources

En vue d'apporter des réponses relatives à l'impact pour la radioprotection de l'utilisation du thorium dans le cycle du combustible, il convient, dans un premier temps, de déterminer les rayonnements issus des matières du cycle. Ce chapitre présente les outils développés qui permettent, à l'aide de données de structure nucléaire et des inventaires en noyaux, de calculer les spectres énergétiques de différents rayonnements d'importance pour la radioprotection. En plus de la description des méthodes utilisées pour les calculs de spectres, la validation par benchmark avec d'autres codes et/ou par mesures expérimentales fait également l'objet de ce chapitre. L'intégration des calculs de spectres dans le code MURE et dans son interface graphique permet de faciliter la définition des termes sources pour les calculs de radioprotection avec MCNP. Ce chapitre présentera ce nouveau module baptisé CHARS pour CHAracterization of Radioactive Sources. Il est important de préciser ici que la détermination des inventaires en noyaux radioactifs au cours des différentes étapes du cycle sont déterminés par MURE et/ou par MureGui. Le lecteur peut se référer au chapitre 1.4 pour connaître le fonctionnement de ces codes.

5.1 Données de structures nucléaires

Pour construire les spectres, il est nécessaire de disposer d'une base de données la plus complète possible répertoriant un certain nombre de grandeurs physiques. La base choisie ici est la base de données ENSDF *Evaluated Nuclear Structure Data File* qui est le fruit de la collaboration internationale *The International Network of Nuclear Structure and Decay Data* (NSDD) établie en 1974 sous l'égide de l'AIEA. À l'heure actuelle cette base contient des informations de structures nucléaires sur

5.1. DONNÉES DE STRUCTURES NUCLÉAIRES

plus de 3000 isotopes dans un format standardisé appelé format ENSDF. Ces données sont publiées dans le journal "Nuclear Data Sheets"[Tul13]. Le format ENSDF est structuré en cartes (*cards*), chacune représentant un noyau produit par une décroissance radioactive. Ces cartes sont structurées en enregistrements (*records*). Le premier indique le noyau fils, le noyau père, le mode de décroissance ainsi que les publications scientifiques sur lesquelles les données sont basées. Un autre enregistrement, celui du père, (*parent record*) informe sur l'énergie du niveau à partir duquel il décroît, le spin parité correspondant à ce niveau, la demi vie du père, et la " $Q_{value}^{gs \rightarrow gs}$ " (du fondamental du père vers le fondamental du fils) de la décroissance.

Dans ce qui suit les "enregistrements" nécessaires à la construction des spectres γ , β^- et α sont évoqués :

- Level Record

Il contient entre autres l'énergie, le spin parité et la demi-vie d'un niveau du fils.

- Gamma Record

Cet enregistrement se situe après l'enregistrement de niveau qui définit le niveau l du noyau fils à partir duquel ce gamma est émis. L'enregistrement gamma donne les énergies et intensités relatives des gamma émis à partir du niveau l.

- Alpha Record

Il contient l'énergie de la raie alpha et l'intensité, en pourcentage des α émis. Cet enregistrement se situe en dessous de l'enregistrement de niveau, correspondant au niveau du fils peuplé par cette transition alpha.

- Beta Record

Situé après l'enregistrement du niveau sur lequel "tombe" cette transition β^- , cet enregistrement donne accès, entre autre, au *endpoint energy* (énergie maximum du β^-) et à l'intensité de cette branche.

Pour plus d'informations sur le format et les données accessibles de la base de données ENSDF, le lecteur pourra se reporter à la référence [Tul01]. D'autres données de structures sont disponibles dont notamment la base du projet international *Decay Data Evaluation Project*, elle-même incorporée dans la base JEF disponible aussi au format ENSDF .

Pour le calcul des spectres neutron, d'autres données sont nécessaires, telles que les sections efficaces (α, n) , le pouvoir d'arrêt des particules α , les rapports de branchement des fissions spontanées et le nombre total moyen de neutron par fission spontanée (se reporter à 5.4 pour plus de détails).

5.2 Spectres gamma

5.2.1 gammas primaires

Les gammas pris en compte dans le calcul sont ceux issus des décroissances radioactives suivantes : β^- , β^+ , α , capture électronique ainsi que les transitions isomériques. L'activité gamma A_γ , de N noyaux A_ZX , de constante radioactive λ , pouvant se désintégrer en J branches (voies de décroissance) différentes, de rapport de branchement R_j , dont chacune peut émettre n_j raies γ d'intensité I_i^j , s'écrit comme suit :

$$A_\gamma = \lambda . N . \sum_{j=1}^J \sum_{i=1}^{n_j} R_j . I_i^j \quad (5.1)$$

L'activité γ , A_i^j d'une raie d'énergie E_i^j est :

$$A_i^j = \lambda . N . R_j . I_i^j \quad (5.2)$$

Voici, en substance, la façon dont le spectre gamma d'un échantillon contenant plusieurs noyaux différents est calculé. À partir de la charge Z , de la masse A et de l'état isomérique I du noyau A_ZX , le programme appelle une fonction de MURE qui permet de connaître tous les descendants directs de ce noyau, et pour chaque voie de décroissance de A_ZX , le programme va lire dans la base ENSDF (cf :5.1) la carte correspondante à cette transition. De cette lecture, le programme accède au rapport de branchement de la transition R_j , à la constante radioactive du noyau A_ZX , et à l'énergie E_i^j et intensité I_i^j de chacune des raies. À ce moment là, pour chaque raie i , le programme incrémente de $\lambda . N_{AX} . R_j . I_i^j$ la valeur du bin correspondant à l'énergie E_i^j dans le spectre. En "bouclant" sur toutes les transitions du noyau A_ZX , on obtient le spectre gamma de ce noyau et en "bouclant" sur tous les noyaux de l'échantillon on obtient le spectre de l'échantillon.

Précaution pour les transitions isomériques

Il arrive que, du fait de la présence des transitions isomériques dans la base de données, certaines raies γ soient deux fois trop intenses car présentes dans deux cartes différentes. Pour illustrer ce problème prenons l'exemple très connu du ^{137}Cs , radioactif β^- : la carte correspondante à cette transition présente une raie à 661.7 keV et une autre de moindre intensité à 283.5 keV, ce qui est correct si l'on considère que son fils est le ^{137}Ba . Cependant, le ^{137}Ba dans son niveau à 661.7 keV doit, en toute rigueur, être considéré comme un isomère ($^{137}\text{Ba}^m$ $T_{1/2} = 2.55\text{min}$). Ce noyau est présent dans l'inventaire et la transition isomérique de ce dernier est dans ENSDF, si bien que l'on va compter une fois la raie à 661.7 keV pour cette transition ($^{137}\text{Ba}^m \rightarrow ^{137}\text{Ba}$) et une deuxième fois pour $^{137}\text{Cs} \xrightarrow{\beta^-} ^{137}\text{Ba}$.

Afin d'éviter cette erreur, une routine cherche parmi les descendants du noyau (^{137}Cs) s'il en existe un qui serait un état isomérique, si oui ($^{137}\text{Ba}^m$), l'énergie de cet état (661.7 keV) est enregistrée (lecture de la carte $^{137}\text{Ba}^m \rightarrow ^{137}\text{Ba}$) puis comparée aux énergies des niveaux présents dans la carte relative à $^{137}\text{Cs} \beta^-$, les gammas issus du niveau de 661.7 keV présents dans cette carte ne sont alors pas ajoutés au spectre.

5.2.2 Photons secondaires induits par les β^-

Certaines substances radioactives, notamment le combustible nucléaire irradié, émettent un nombre considérable de β^- . Ces électrons vont interagir avec la matière environnante par collisions sur les électrons et interactions avec les noyaux du milieu, et provoquer l'émission de photons secondaires. Le spectre en énergie de ces photons secondaires est la superposition d'un spectre continu à un spectre de raies.

Le spectre de raies provient de l'interaction d'un électron incident avec un électron d'une couche interne d'un atome du milieu qui vient éjecter (ionisation) ou promouvoir sur une couche plus externe (excitation) l'électron de l'atome, ce dernier créant ainsi une vacance dans sa couche initiale. Cette lacune sera comblée par un électron d'une couche supérieure tout en émettant un photon, appelé photon de fluorescence, d'énergie correspondant à la différence d'énergie entre les deux orbitales. Ce spectre de raies est donc caractéristique des éléments chimiques présents dans l'échantillon et indépendant de l'énergie des β^- . Étant donnée l'origine atomique de ces photons, l'énergie des raies varie selon l'élément de quelques électrons-volt (54 eV pour le Lithium) à un peu plus d'une centaine de keV (115 keV pour l'uranium) [TV01]. Lors de la relaxation de l'atome excité (ou ionisé), un processus alternatif à l'émission

5.2. SPECTRES GAMMA

d'un photon X peut avoir lieu : comme précédemment un électron d'une couche plus externe va combler la lacune mais cette fois la différence d'énergie entre les deux orbitales est cédée à un autre électron du cortège qui peut, si l'énergie transférée est suffisante, être éjecté de l'atome. Cet électron éjecté est appelé électron Auger. Le spectre continu provient du rayonnement de freinage aussi appelé Bremsstrahlung. Une particule chargée et accélérée perd une partie de son énergie par rayonnement électromagnétique, ce phénomène apparaît lorsqu'un électron est accéléré dans le champ coulombien du noyau. Étant donné que tous les paramètres d'impact sont possibles, il en résulte un spectre continu compris entre l'énergie cinétique de l'électron incident (toute l'énergie est cédée au photon) et 0. La proportion de l'énergie cinétique initiale des électrons, convertie en rayonnement de freinage (le reste étant communiqué aux électrons du milieu) dépend du Z du matériau et de l'énergie initiale de l'électron : la figure 5.1 montre en fonction de l'énergie de l'électron cette proportion pour deux matériaux différents : l'eau et le dioxyde d'uranium [M.J11].

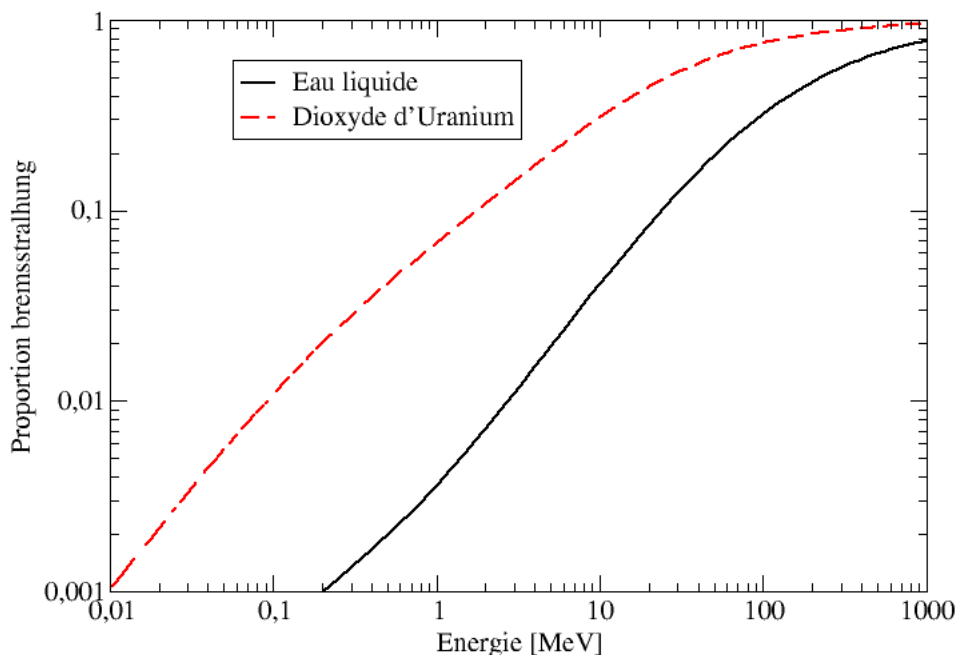


FIGURE 5.1 – Proportion de l'énergie cinétique initiale des électrons, convertie en bremsstrahlung

5.2. SPECTRES GAMMA

La prise en compte du rayonnement de photons X produit par l'interaction des β^- dans une matière radioactive nécessite tout d'abord de connaître le spectre des β^- émis (c'est l'objet de la sous section 5.2.2.2) mais aussi de simuler les interactions décrites précédemment afin d'avoir accès aux photons secondaires, puis de simuler le parcours de ces photons pour prendre en compte la modification de leurs spectres et de leurs nombres au cours de leur traversée de la matière. Ce transport couplé électron-photon peut être réalisé à l'aide de MCNP5. La section suivante montre comment le transport des électrons et la création des photons secondaires est réalisé dans ce code.

5.2.2.1 Transport des électrons avec MCNP

Dans MCNP le transport des électrons ne s'effectue pas en suivant interaction par interaction l'histoire de la particule car ce procédé serait trop dispendieux en temps de calcul. En effet, si pour les particules neutres comme les neutrons ou les photons, les interactions peuvent être considérées comme des collisions ponctuelles entre lesquelles la particule évolue librement sans interagir, il n'en est pas de même pour les électrons pour lesquels les interactions sont dominées par des forces coulombiennes de grandes portées, où l'énergie perdue à chaque interaction est très faible. Par exemple, il faut environ 30 collisions à un neutron pour faire chuter son énergie de 0.5 MeV à 62.5 keV dans de l'aluminium, un peu moins d'une dizaine pour un photon alors que pour la même perte d'énergie un électron aura besoin d'environ 10^5 collisions individuelles [M.J63]. Afin de palier à ce problème, MCNP se base sur des théories où l'histoire de l'électron est "condensée", c'est à dire que l'histoire de l'électron est discrétisée en pas durant lesquels un nombre suffisant d'interactions doit avoir lieu. Par suffisant, s'entend un compromis justifié par deux limitations : le nombre d'interactions doit être assez grand pour satisfaire à la théorie des diffusions multiples mais pas trop afin que l'énergie moyenne perdue sur ce pas soit petite devant l'énergie de l'électron (domaine de validité des théories utilisées). Ces pas correspondent à un binning en énergie tel que $\frac{E_n}{E_{n-1}} = 0.917$ avec E_n énergie de l'électron au pas n. Pour chacun de ces pas, est calculée la partie collisionnelle (*i.e* interaction électron-électron) des valeurs de pouvoir d'arrêt. Cependant comme en un pas d'énergie plusieurs collisions individuelles aléatoires ont lieu, le pouvoir d'arrêt collisionnel sera tiré aléatoirement dans une loi de probabilité prenant en compte l'effet du *straggling* en énergie. Pour décrire avec plus de détails la marche aléatoire des électrons ces pas sont à leur tour divisés en pas plus petits, l'énergie supérieure

5.2. SPECTRES GAMMA

de ces "sous pas" étant calculée à l'aide du pouvoir d'arrêt et de la distance spatiale de ces "sous pas". À chacun de ces petits pas sont tirés, selon une loi de probabilité, la déviation en angle des électrons ainsi que la production des particules secondaires (électrons, photon X de fluorescence, photon de freinage) . Les photons de freinage sont tirés aléatoirement à chaque "sous pas", la direction et l'énergie de chaque photon sont tirées selon une distribution de probabilité, puis est soustraite de l'énergie de l'électron celle du photon de freinage afin de prendre en compte le ralentissement des électrons par radiation. Le lecteur pourra trouver plus de détails sur les théories utilisées par MCNP pour le transport des électrons dans la référence [Hug97].

5.2.2.2 Spectres β^-

Lors d'une transition β^- , un neutron du noyau se désintègre par la force faible en un électron, un proton et un anti-neutrino électronique. On a donc à l'échelle du noyau : ${}^A_ZX \rightarrow {}^A_{Z+1}Y + e^- + \bar{\nu}_e$. Si l'énergie totale émise par cette désintégration est quantifiée et dépend de la différence d'énergie du niveau du père et du fils, en revanche elle est distribuée entre l'électron, l'anti-neutrino et le noyau de recul, si bien que le spectre en énergie de l'électron est un spectre continu. Fermi a développé une théorie quantique de la décroissance beta fondée sur la théorie de l'émission spontanée de photons par des systèmes dans des états excités. En effet, dans ce processus un système dans un état bien défini ayant un excès d'énergie libère spontanément cette énergie par la création d'une (ou plusieurs) particule(s). La probabilité de transition par unité de temps λ est donnée par l'expression générale suivante, appelée également la règle d'or de Fermi :

$$\lambda = \frac{2\pi}{\hbar} |H'_{if}|^2 \rho(E_f)$$

$$\text{avec } H'_{if} = \int \Psi_f^* H' \Psi_i d\tau$$

Les fonctions d'ondes Ψ_f et Ψ_i représentent l'état final et l'état initial de tout le système, qui est donc pour Ψ_i la fonction d'onde du noyau père (A_ZX) $\Psi_i = \Psi_{{}^A_ZX}$ et qui est pour l'état final composé de trois parties : la fonction d'onde du noyau fils, celle de l'électron et celle de l'anti-neutrino $\Psi_i^* = \phi_{{}^A_{Z+1}X}^* \phi_{e^-}^* \phi_{\bar{\nu}}^*$, H' est la partie de l'hamiltonien responsable de la décroissance β^- , $\rho(E_f) = \frac{dn}{dE_f}$ est la densité d'état (nombre d'états par unité d'énergie) accessible au système après la transition et enfin $d\tau$ est l'élément de volume.

5.2. SPECTRES GAMMA

Les fonctions d'ondes $\phi_{e^-}^*$ et $\phi_{\bar{\nu}}^*$ sont prises comme des ondes planes on a donc :

$$\phi_{e^-}^* = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp(-i \cdot \frac{p_{e^-} \cdot r}{\hbar})$$

et

$$\phi_{\bar{\nu}}^* = \frac{1}{\sqrt{V}} \exp(-i \cdot \frac{p_{\bar{\nu}} \cdot r}{\hbar})$$

L'élément de matrice H'_{if} qui couple l'état initial aux états finaux doit prendre en compte l'annihilation du neutron et la création du proton, le réarrangement de la structure du noyau suite à ce changement de nature du nucléon. La partie leptonique de l'élément de matrice doit créer un électron et un anti-neutrino tout en orientant leurs spins de sorte que le moment angulaire total lors de la transition soit conservé. Cependant on considère ici que H' est le plus simple des opérateurs à savoir simplement une constante (approche de Fermi car l'hamiltonien n'était pas connu), soit g cette constante de couplage, on a donc pour $|H'_{if}|^2$:

$$|H'_{if}|^2 = g^2 \left| \int \phi_{Z+1}^* \cdot \frac{1}{V} \exp(-i \frac{(p_{e^-} + p_{\bar{\nu}}) \cdot r}{\hbar}) \cdot \phi_{Z}^* \cdot d\tau \right|^2$$

La probabilité de présence du noyau (et donc sa fonction d'onde) devient presque nulle pour $r > R$ avec R le rayon du noyau, si bien que seule la partie $r \leq R$ des fonctions d'ondes du neutrino et de l'électron contribue à l'intégrale ci-dessus. De plus la longueur d'onde de De-Broglie du neutrino et de l'électron étant grande, comparée aux dimensions du noyau, on peut approximer la fonction d'onde de ces leptons à leurs valeurs à l'origine ($r=0$) (théorie de Fermi). En faisant cela on obtient :

$$|H'_{if}|^2 = \frac{g^2}{V^2} \left| \int \phi_{Z+1}^* \phi_{Z}^* \cdot d\tau \right|^2$$

On pose $|M_{if}|^2 = \left| \int \phi_{Z+1}^* \phi_{Z}^* \cdot d\tau \right|^2$

Calcul de $\rho(E_f)$

Les états individuels étant caractérisés par une position et une impulsion, le nombre d'états contenu dans un volume V et compris entre p et $p+dp$ est donné par $\frac{V d^3p}{h^3}$ où h^3 est le volume élémentaire dans l'espace des phases et d^3p le volume dans l'espace des impulsions qui s'écrit $d^3p = 4\pi p^2 dp$. On a donc pour l'électron et le neutrino (un seul état est disponible pour le noyau)

$$dn_{e^-} = \frac{V 4 \cdot \pi p_{e^-}^2}{h^3} dp_{e^-} \quad , \quad dn_{\bar{\nu}} = \frac{V 4 \pi p_{\bar{\nu}}^2}{h^3} dp_{\bar{\nu}}$$

5.2. SPECTRES GAMMA

L'énergie de la transition Q est réparti entre l'anti-neutrino $E_{\bar{\nu}}$, l'électron E_e et le proton, on peut négliger la part distribuée au proton étant donné sa masse comparée aux deux leptons on a donc $Q = E_{\bar{\nu}} + E_e$ de plus on négligera la masse du neutrino d'où $p_{\bar{\nu}} = \frac{E_{\bar{\nu}}}{c}$ il vient pour l'anti-neutrino :

$$dn_{\bar{\nu}} = \frac{V \cdot 4\pi(Q - E_e)^2}{h^3 c^2} \frac{dE_f}{c}$$

On a ainsi pour la densité d'état :

$$\rho = V^2 \frac{8\pi^2}{h^6 c^3} (Q - E_e)^2 p_e^2 dp_e$$

La probabilité de décroître en émettant un β^- d'impulsion comprise entre p_e et $p_e + dp_e$ est $I(p_e)dp_e = \frac{d\lambda}{dp_e} dp_e$

$$I(p_e)dp_e = \frac{2\pi g^2}{\hbar} |M_{if}|^2 \frac{8\pi^2}{h^6 c^3} (Q - E_e)^2 p_e^2 dp_e$$

En rappelant que l'on a :

$$p^2 c^2 = E_{tot}^2 - m^2 c^4 \text{ et } E_{tot} = E + mc^2 \text{ donc } p = \frac{1}{c} \sqrt{E + 2Emc^2}$$

On trouve le spectre en énergie :

$$N(E_e) . dE_e = C . (Q - E_e)^2 \sqrt{E_e + 2E_e mc^2} (E_e + mc^2) . dE_e$$

Il manque à ce modèle la force d'interaction coulombienne entre le noyau et l'électron, cette force va exercer un rappel sur l'électron, et va avoir tendance à déplacer le spectre vers les basses énergies (ce sera donc l'inverse pour un β^+), ce nouveau terme appelé fonction de Fermi et noté $F(Z, E_e)$ est donné par [Fer34] :

$$F(Z, E_e) = \frac{2(1 + \gamma)}{\Gamma(1 + 2\gamma)^2} (2p\rho)^{2(\gamma-1)} e^{\pi\eta} |\Gamma(\gamma + i\eta)|^2$$

avec $\gamma = \sqrt{1 - (\alpha Z)^2}$, $\eta = \alpha Z E_e / p_e$, $\rho = r_{Z+1}^A X / \hbar$ et α la constante de structure fine. On a donc finalement :

$$N(E_e) . dE_e = C . (Q - E_e)^2 \sqrt{E_e + 2E_e mc^2} (E_e + mc^2) . F(Z, E) . dE_e \quad (5.3)$$

Une des hypothèses était de prendre les fonctions d'ondes des leptons comme constantes et ayant la valeur de la fonction d'onde plane en $r=0$, ceci est valable pour un moment

5.2. SPECTRES GAMMA

orbital de la paire de lepton égale à zéro (transition permise). En revanche il se peut tout de même que, bien que le recouvrement des fonctions d'ondes des leptons et du noyau soit faible avec un $l > 0$ une transition produisant la paire de lepton avec ce $l > 0$ ait lieu (transition interdite), il faudrait donc en toute rigueur faire un développement de Taylor des fonctions d'ondes planes afin de prendre en compte les termes d'ordres supérieurs correspondant aux transitions interdites ($l > 0$). Étant donné que le moment angulaire total est conservé on a $\vec{J}_{init} = \vec{J}_{final} + \vec{S}_e + \vec{S}_\nu + \vec{l}$ avec \vec{J}_{init} le moment angulaire total du noyau avant la décroissance \vec{S}_e le spin de l'électron et \vec{S}_ν celui du neutrino et \vec{l} le moment orbital de la paire de lepton. Pour les transitions permises on a $l = 0$, de plus $|S_e - S_\nu| \leq S \leq |S_e + S_\nu|$ avec S la projection du spin de la paire de lepton qui vaut donc 0 ou 1 ($1/2 - 1/2$ ou $1/2 + 1/2$). On a donc pour les transitions permises la règle de sélection suivante : $\Delta J = |J_{init} - J_{final}| = 0, \pm 1$. On peut classer les transitions β^- comme suit :

Permise : $\Delta J = 0, \pm 1$ *non*

Première Interdite : $\Delta J = 0, \pm 1, \pm 2$ *oui*

Deuxième Interdite : $\Delta J = \pm 2, \pm 3$ *non*

...

La transition $\Delta J = \pm 2$ *oui* est appelée première transition interdite **unique**, la transition $\Delta J = \pm 3$ *non* deuxième transition interdite **unique**, etc...

Où oui ou non indiquent un changement de parité éventuel du noyau. En règle générale les transitions interdites sont plus rares et d'autant plus rares que l'ordre de la transition est élevé (*eg* deuxième interdite plus rare que première interdite). Ainsi, dans le modèle utilisé ici, seuls les transitions permises et les premières interdites sont prises en compte, les autres sont considérées comme des transitions permises. Si considérer comme permise une transition où $\Delta J = 0, \pm 1$ *oui* est une bonne approximation pour le calcul du spectre [Mur71] en revanche ce n'est pas le cas pour $\Delta J = \pm 2$ *oui* et il faut ajouter à l'équation 5.3 un terme correctif pour cette première transition interdite qui peut s'exprimer ainsi [Mur71] :

$$Cor(E_e, Q)_{1*} = \alpha(E_e(E_e + \beta) + (Q - E_e)^2)$$

Avec $\alpha = 3.84 MeV$, $\beta = 1.02 MeV$ et $1*$ signifie que ce terme correctif ne s'applique que pour la première transition interdite où $\Delta J = \pm 2$. L'équation 5.3 devient :

$$N(E_e) \cdot dE_e = C \cdot (Q - E_e)^2 \sqrt{E_e + 2E_e mc^2 (E_e + mc^2)} \cdot F(Z, E) \cdot Cor(E_e, Q)_{1*} \cdot dE_e \quad (5.4)$$

5.2. SPECTRES GAMMA

Le spectre β^- défini dans l'équation 5.4 est valable pour une branche, pour calculer le spectre β^- d'un noyau il faut prendre en compte toutes les branches de l'état fondamental du père (ou supérieur si état isomérique) aux états accessibles du fils. Le nombre de β^- d'énergie comprise entre E et $E + dE$ produit par $N_{\frac{A}{Z}X}$ noyaux est :

$$A(E)dE = N_{\frac{A}{Z}X} \lambda_{\frac{A}{Z}X} R_{\beta^-} \sum_b I_b N(E, Q^b) dE$$

avec R_{β^-} le rapport de branchement β^- du noyau père, b pour branches, I_b l'intensité de la branche b et $N(E, Q^b)$ la distribution définie par l'équation 5.4 normalisée à l'unité où Q^b est l'énergie dégagée lors de la transition (énergie maximum de l'électron ou *endpoint energy*) et qui vaut $Q^b = Q_{value}^{gs \rightarrow gs} + E_{\frac{A}{Z}X}^* - E_{\frac{A+1}{Z}X}^{*b}$. $E_{\frac{A}{Z}X}^*$ est l'énergie du niveau du père (0 si fondamental) et $E_{\frac{A+1}{Z}X}^{*b}$ l'énergie du niveau du fils sur lequel décroît cette branche. Enfin $Q_{value}^{gs \rightarrow gs}$ est l'énergie libérée lors de la décroissance du noyau père à partir de son état fondamental (*gs* pour *ground state*) vers l'état fondamental du fils. Pour savoir si la transition nécessite l'application du terme correctif $Cor(E_e, Q)_{1*}$ il faut avoir accès au spin-parité du noyau père ainsi qu'à celui du noyau fils peuplé dans un état donné et vérifier qu'elle satisfait à $\Delta J = \pm 2$ *oui* , Toutes ces données nécessaires à la fabrication des spectres β^- sont présentes dans la base ENSDF.

5.2.2.3 Validation β^-

Le groupe ERDRE de Subatech Nantes a développé un code qui permet de calculer les spectres β^- et d'anti-neutrino en utilisant le formalisme défini dans la référence [Hub12]. Ce code prend en compte précisément les transitions interdites uniques jusqu'au troisième ordre. Le spectre d'une transition non unique d'ordre n est pris comme étant la transition unique d'ordre $n-1$. Par exemple la correction au spectre d'une transition $\Delta J = \pm 2$ *non* (2^{me} interdite) est la même que $\Delta J = \pm 2$ *oui* (1^{re} interdite unique), les données de structures nucléaires proviennent de JEFF3.1, JENDL 2000, ENDF VI.8 et de ENSDF. De plus, ce code prend en compte des termes correctifs non pris en compte dans CHARS, tels que l'écrantage des électrons et la taille finie du noyau [FCE⁺12].

Pour rappel le code CHARS utilise ENSDF pour tous les noyaux et ne prend en compte que les transitions permises et les premières interdites.

La figure 5.2 représente des spectres β^- , normalisés à une décroissance β^- , calculés par CHARS et par Subatech pour 4 produits de fissions choisis pour leurs abondances

5.2. SPECTRES GAMMA

en fin d'irradiation et également pour le fait qu'ils ont des ordres de transitions différents. Par exemple les 30 transitions β^- du ^{106}Rh sont permises, l'accord entre les deux codes pour ce noyau est très bon. Les spectres calculés pour le ^{90}Sr , qui possède une seule transition interdite d'ordre 1 ($\Delta J = -2$, oui), sont également en accord. En revanche pour le ^{134}Cs et le ^{137}Cs , qui possèdent tous deux des transitions d'ordre 2 (ou supérieures pour le ^{137}Cs) l'accord est moins bon. Le désaccord aux énergies les plus élevées, vient du fait que ces transitions interdites d'ordre 2 ou supérieurs ont les Q^b les plus grands. Cependant il est important de noter que la plupart des transitions β^- qui ont lieu dans un combustible usé sont permises ou interdites du premier ordre. Par exemple à partir d'une évolution MURE on détermine que des 3433 transitions¹ β^- présentes dans un combustible usé UOx, 2987 (soit 87%) sont des transitions permises ou interdites du premier ordre, le reste étant soit des transitions interdites d'ordres supérieurs, soit des transitions pour lesquelles le spin du père ou du fils n'est pas renseigné dans ENSDF.

1. Ce nombre varie en fonction des noyaux pris en compte par le calcul MURE et de l'exhaustivité de ENSDF

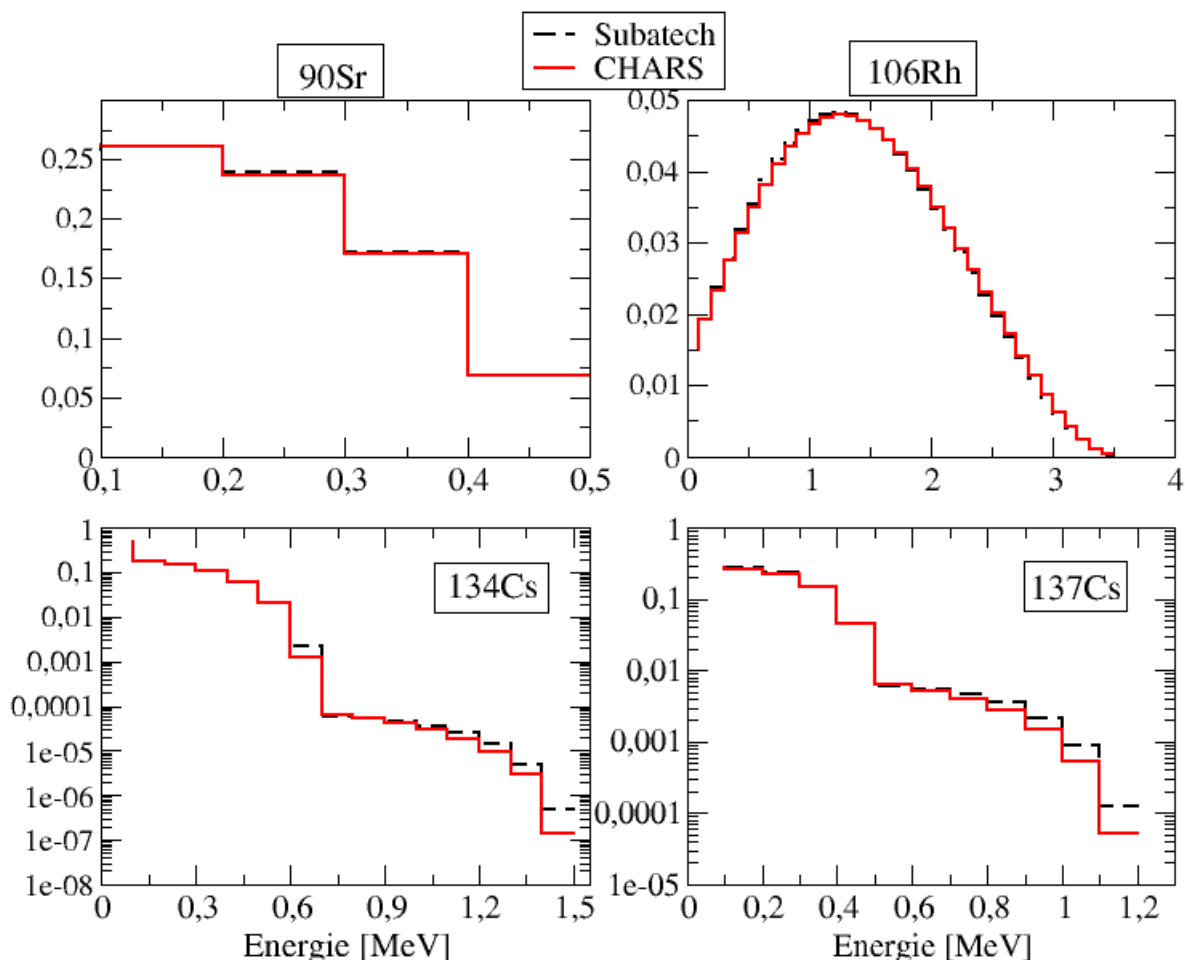


FIGURE 5.2 – Comparaison de spectres β^- calculés par Subatech et par CHARS pour une décroissance

5.2.3 Part du Bremsstrahlung des β^- dans le spectre γ d'un combustible usé

La forte émission β^- du combustible usé, due en très grande partie aux produits de fission, va induire des photons secondaires principalement issus du rayonnement de freinage.

On se propose ici d'étudier la part de ce rayonnement secondaire dans le spectre gamma émis pour différents combustibles usés à différents temps après le déchargement. Les combustibles usés étudiés ici sont du ThU, ThPu, MOX, et de l'UOx irradiés durant 55GWj/t dans des REP. Les calculs d'évolution du combustible sont identiques à ceux définis au chapitre 1. Une fois que les inventaires en fin d'irradia-

5.2. SPECTRES GAMMA

tion sont connus, on réalise le transport des β^- dans un crayon combustible puis celui des gammas issus des décroissances radioactives et on enregistre, dans ces deux cas, le flux gamma à la surface du crayon. Les calculs de transports sont effectués à l'aide de MCNP5. Les termes sources γ (de décroissances) et β^- sont mis à jour pour chaque pas de temps (1 mois, 6 mois, 1 an, 5 ans et 10 ans). Par conséquent un calcul MCNP5 par pas de temps et par combustible est réalisé. C'est de l'inventaire en fin d'irradiation et de la résolution des équations de Bateman que viennent les inventaires au cours du refroidissement.

Calcul avec MCNP : La géométrie simulée consiste en un crayon combustible REP infini. Plus précisément le crayon est simulé sur une longueur de 10 cm aux extrémités desquelles ont été définies des conditions de réflexion. Le rayon des pastilles est de 4.18 mm, l'épaisseur de la gaine en zirconium de 0.57 mm. La composition des pastilles est la composition en fin d'irradiation (issu du calcul MURE) quelle que soit le temps de refroidissement. La source (gamma ou β^-) est distribuée de façon homogène dans le combustible.

Le tableau 5.1 donne les flux γ à la surface du crayon issus des gamma de décroissance et des β^- pour les différents combustibles à plusieurs temps de refroidissement. Le tableau donne aussi le pourcentage de ce flux issu du ralentissement des β^- .

5.2. SPECTRES GAMMA

Tableau 5.1 – Part du rayonnement de freinage issu des β^- dans le combustible utilisé

Temps	1 mois	6 mois	1 an	5 ans	10 ans
MOX					
γ decr. $\gamma.s^{-1}.cm^{-2}.g^{-1}$	$6.19.10^9$	$1.83.10^9$	$1.02.10^9$	$3.11.10^8$	$1.69.10^8$
Freinage β^- $\gamma.s^{-1}.cm^{-2}.g^{-1}$	$3.76.10^8$	$2.55.10^8$	$1.76.10^8$	$1.47.10^7$	$4.85.10^6$
$\% \beta^-$	5.74	12.2	14.7	4.51	2.80
ThPu					
γ decr.	$8.23.10^9$	$1.98.10^9$	$1.06.10^9$	$3.26.10^8$	$1.77.10^8$
Freinage β^-	$3.86.10^8$	$2.48.10^8$	$1.70.10^8$	$1.54.10^7$	$6.19.10^6$
$\% \beta^-$	4.48	11.1	13.8	4.51	3.35
UOx					
γ decr.	$6.43.10^9$	$1.90.10^9$	$1.03.10^9$	$3.18.10^8$	$1.64.10^8$
Freinage β^-	$3.41.10^8$	$2.15.10^8$	$1.45.10^8$	$1.55.10^7$	$8.10.10^6$
$\% \beta^-$	5.04	10.2	12.3	4.64	4.70
ThU					
γ decr.	$1.02.10^{10}$	$2.04.10^9$	$9.75.10^8$	$3.29.10^8$	$1.79.10^8$
Freinage β^-	$3.15.10^8$	$1.58.10^8$	$1.01.10^8$	$1.75.10^7$	$1.32.10^7$
$\% \beta^-$	2.99	7.19	9.38	5.05	6.85

Le flux de γ produit par le freinage des β^- dépend trivialement de l'activité β^- et de la forme du spectre : un β^- plus énergétique produit plus de photons (cf. figure 5.1). La composition et la densité du milieu traversé jouent un rôle mineur dans la comparaison entre les combustibles puisque les densités sont proches ainsi que les compositions (en Z). La partie la plus énergétique du spectre β^- est dominée par quelques isotopes seulement : le ^{144}Pr (décroissance du ^{144}Ce $T_{1/2} = 285j$) le ^{106}Rh (^{106}Ru $T_{1/2} = 374j$), et l' ^{90}Y (^{90}Sr $T_{1/2} = 29ans$). Un mois après déchargement, le ThU produit moins de gamma de freinage que les autres bien que l'activité β de ce dernier soit plus grande (cf. figure 5.3), activité due en partie au ^{233}Pa . Ceci s'explique par une production moindre de ^{106}Rh ² et donc un spectre moins énergétique. À dix ans de refroidissement le MOX et le ThPu produisent moins de rayonnement de freinage alors que leurs activités sont plus élevées. Cette plus haute activité provient du ^{241}Pu , émetteur très peu énergétique. Ces combustibles au plutonium ont des spectres beta moins durs car ils contiennent en leur sein moins

2. Rendement de fission cumulé du ^{106}Rh : ^{233}U $2.5.10^{-3}$, ^{235}U $4.0.10^{-3}$, ^{239}Pu $4.3.10^{-2}$ ^{241}Pu $6.1.10^{-2}$

5.2. SPECTRES GAMMA

d' ^{90}Y (seul émetteur à haute énergie à 10 ans) que les combustibles ThU et ThPu³, si bien qu'ils produisent moins de rayonnements de freinage. La figure 5.3 trace les rapports de la somme des activités du ^{144}Pr , ^{106}Rh , ^{90}Y sur le total pour les combustibles considérés.

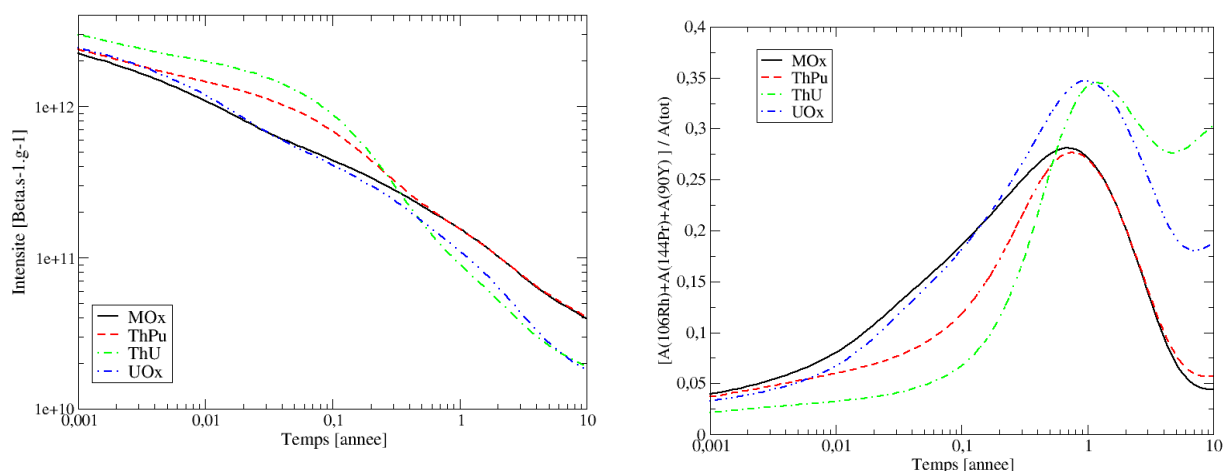
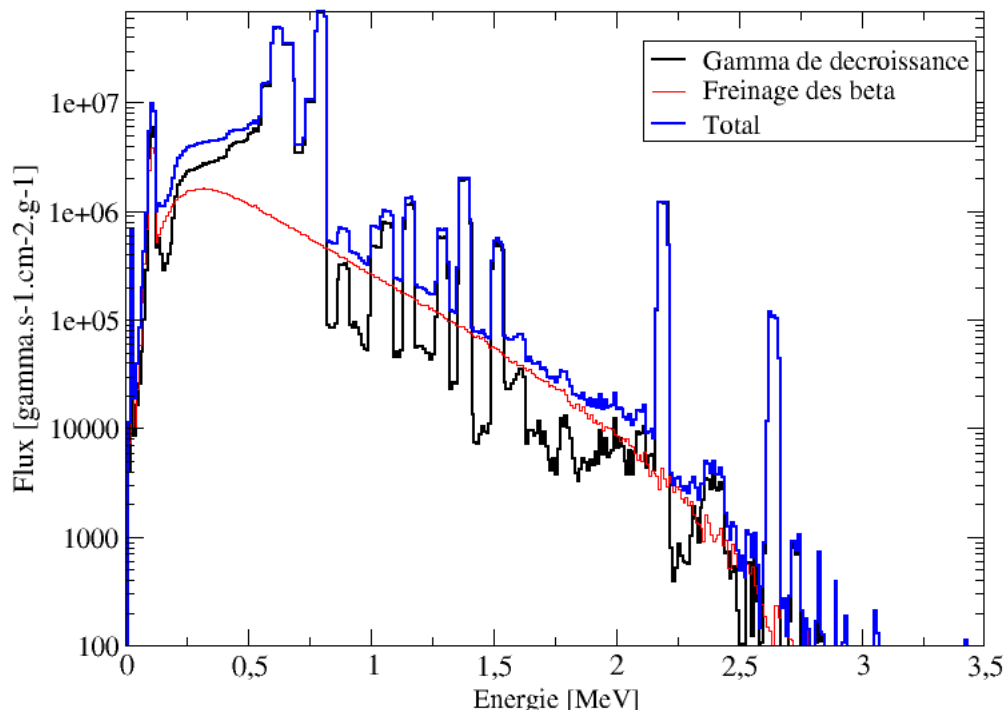


FIGURE 5.3 – *Gauche* : Activité β^- des combustibles usés. *Droite* : Rapport de la somme des activités β^- des émetteurs les plus énergétiques sur l'activité totale.

La figure 5.4 représente le flux gamma à la surface du crayon pour un combustible ThU refroidi un an. Il est indiqué la composante issue des γ de décroissance et de celle issue des β^- . On observe les raies X du thorium et de l'uranium (~ 110 keV) ainsi que celle du ^{136}Xe (~ 30 keV). On notera la raie à 2.6 MeV du ^{206}Tl beaucoup plus présente que dans les combustibles non thoriés. Les γ issus des β^- représentent une part non négligeable du flux sur une large gamme du spectre.

3. Rendement de fission cumulé du ^{90}Y : ^{233}U $6.8 \cdot 10^{-2}$, ^{235}U $5.8 \cdot 10^{-2}$, ^{239}Pu $2.1 \cdot 10^{-2}$, ^{241}Pu $1.5 \cdot 10^{-2}$

FIGURE 5.4 – Spectre du flux γ d'un combustible ThU à 1 an après déchargement

5.3 Validations γ

Afin de s'assurer de l'exactitude du calcul des spectres γ de décroissance, deux études ont été réalisées : une comparaison avec la mesure d'un échantillon de minerai de thorium non irradié et une comparaison avec un autre code de calcul portant sur un combustible nucléaire irradié.

5.3.1 Minerai de Thorium

Le minerai étudié ici est du carbonate de calcium ($CaCO_3$) provenant du complexe de Fen en Norvège. La datation par $^{40}Ar/^{39}Ar$ indique un âge moyen des roches de ce complexe de $583 \pm 15 Ma$ (dans le passé à partir de maintenant) [MTED98]. Une spectroscopie gamma de cette roche a été réalisée dans la gamme d'énergie $0 - 2 MeV$. La mesure a été effectuée à l'aide d'un cristal de germanium assimilable à un cylindre de 1 cm de rayon pour 6 cm de hauteur, contenu dans un cylindre

5.3. VALIDATIONS γ

d'aluminium d'environ 2mm. À 5 cm du détecteur est placé l'échantillon de carbonate de calcium d'environ 0.25 kg lui même placé dans un château de plomb afin de colimater les rayonnements. La durée d'acquisition est de 85000 secondes. Le spectre de bruit de fond provient d'une base de données du laboratoire et est donnée pour des conditions expérimentales identiques et pour un temps d'acquisition de 200000 secondes, ce spectre de bruit de fond a donc été normalisé pour correspondre à un temps de mesure de 85000 secondes. La figure 5.5 représente le spectre mesuré ainsi que le spectre de bruit de fond, les énergies et noyaux émetteurs sont indiqués en bleu pour les chaînes de décroissance de l'uranium et en noir pour le thorium (ces spectres ne sont pas divisés par l'efficacité du détecteur).

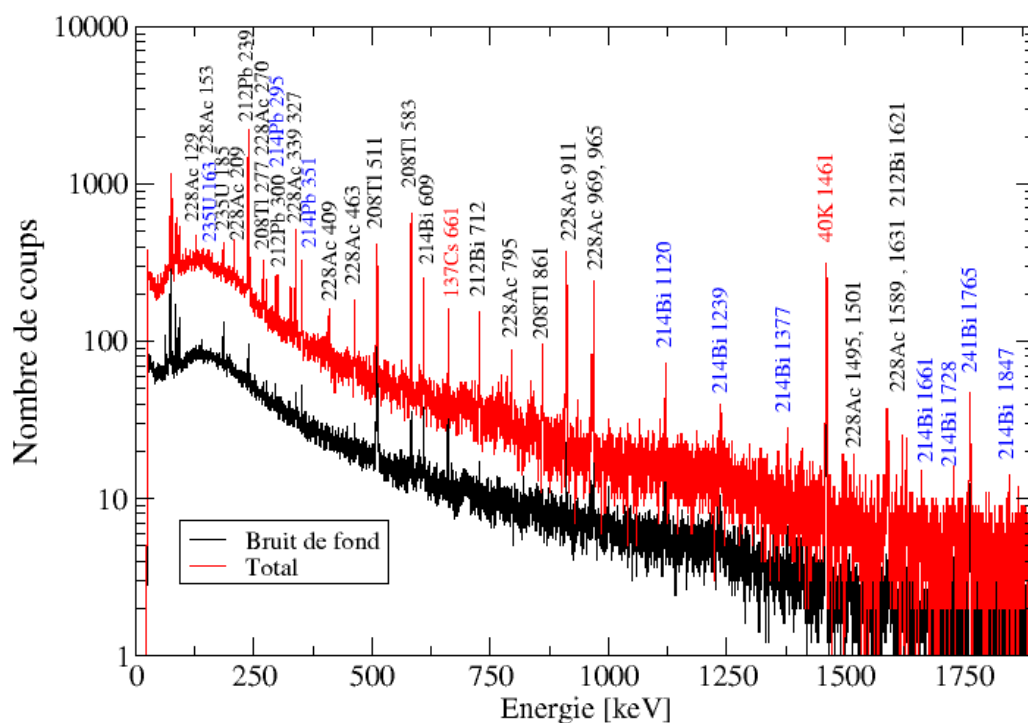


FIGURE 5.5 – Spectre gamma mesuré de minerai de thorium

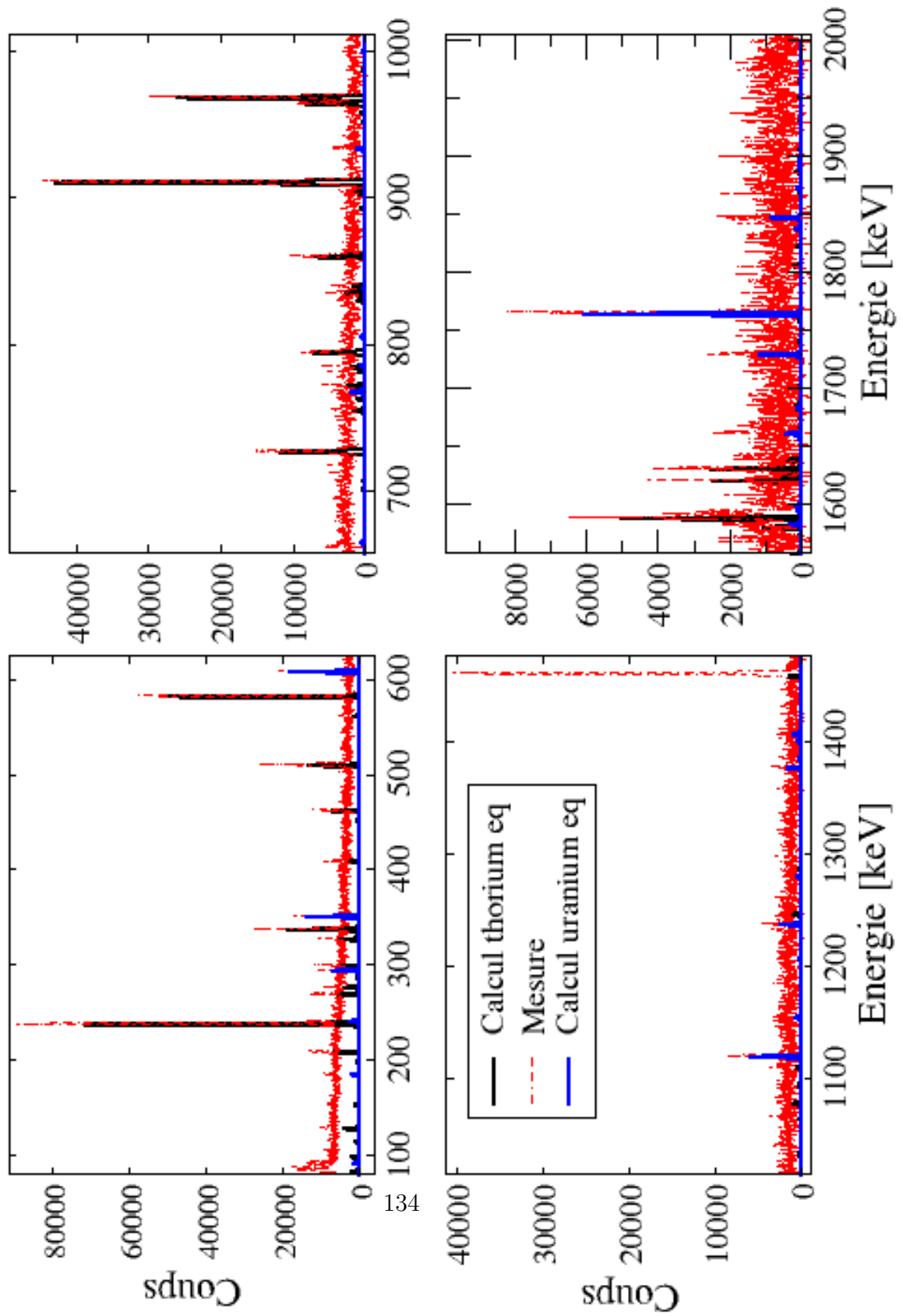
Afin d'exploiter cette mesure, il faut tout d'abord soustraire le bruit de fond du spectre, puis après étalonnage, les pics sont assimilés à des gaussiennes dont la position des centroides donne accès aux énergies des raies. La détermination de

5.3. VALIDATIONS γ

l'aire sous ces gaussiennes divisée par l'efficacité du détecteur aux énergies correspondantes, permet de connaître l'intensité de chaque raie. L'analyse décrite ci-dessus a été réalisée à l'aide du module *gf3* du logiciel *RadWare* [Rad11].

Le spectre est calculé en considérant du ^{232}Th à l'équilibre avec ses descendants, en effet la mise à l'équilibre du thorium naturel prend environ 60 ans, faire l'hypothèse d'un thorium à l'équilibre revient donc à considérer que ce minerai de thorium s'est formé il y a plus de 60 ans, ce qui est une hypothèse plus que raisonnable. La figure 5.5 fait état de raies provenant des descendants des isotopes de l'uranium naturel, ainsi, dans le calcul seront prises en compte les chaînes des uranium de l'uranium naturel, ici aussi l'uranium est considéré à l'équilibre avec ses descendants se qui se justifie par le fait que l' ^{238}U met environ 2.10^6 ans pour atteindre l'équilibre séculaire et l' ^{235}U 5.10^5 ans alors que selon [MTED98] la roche en question aurait de l'ordre de $583 \pm 15\text{Ma}$.

Afin de comparer ce spectre calculé au spectre expérimental, la composante du spectre calculé provenant de l'uranium est normalisé à l'aire sous le pic de 1765keV du ^{214}Bi mesuré et la composante provenant du thorium est normalisée en utilisant le pic de 911keV de l' ^{228}Ac . La figure 5.6 présente une superposition du spectre calculé au spectre mesuré (divisée par l'efficacité du détecteur). Le lecteur pourra apprécier le fait que toutes les raies présentes dans la mesure sont prédites, à l'exception de la raie à 1460keV du ^{40}K , présent dans l'échantillon mais non pris en compte dans le calcul, et des raies X du plomb à basse énergie (créées par l'interaction des γ avec le collimateur).



5.3. VALIDATIONS γ

La courbe 5.7 indique le rapport des intensités mesurées sur celles calculées en fonction de l'énergie. L'histogramme 5.8 représente le nombre de raies comprises dans différents intervalles de ce rapport, 68% des raies sont comprises entre 0.8 et 1.2 et 83% entre 0.6 et 1.5 ce qui est plutôt satisfaisant sachant que l'auto-protection, c'est à dire l'absorption des γ par la roche elle même, qui est plus probable à faible énergie, n'a pas été prise en compte. Par conséquent ce phénomène permet d'expliquer le fait que les raies de basses énergies soient pour la plupart surestimées (cf. figure 5.7).

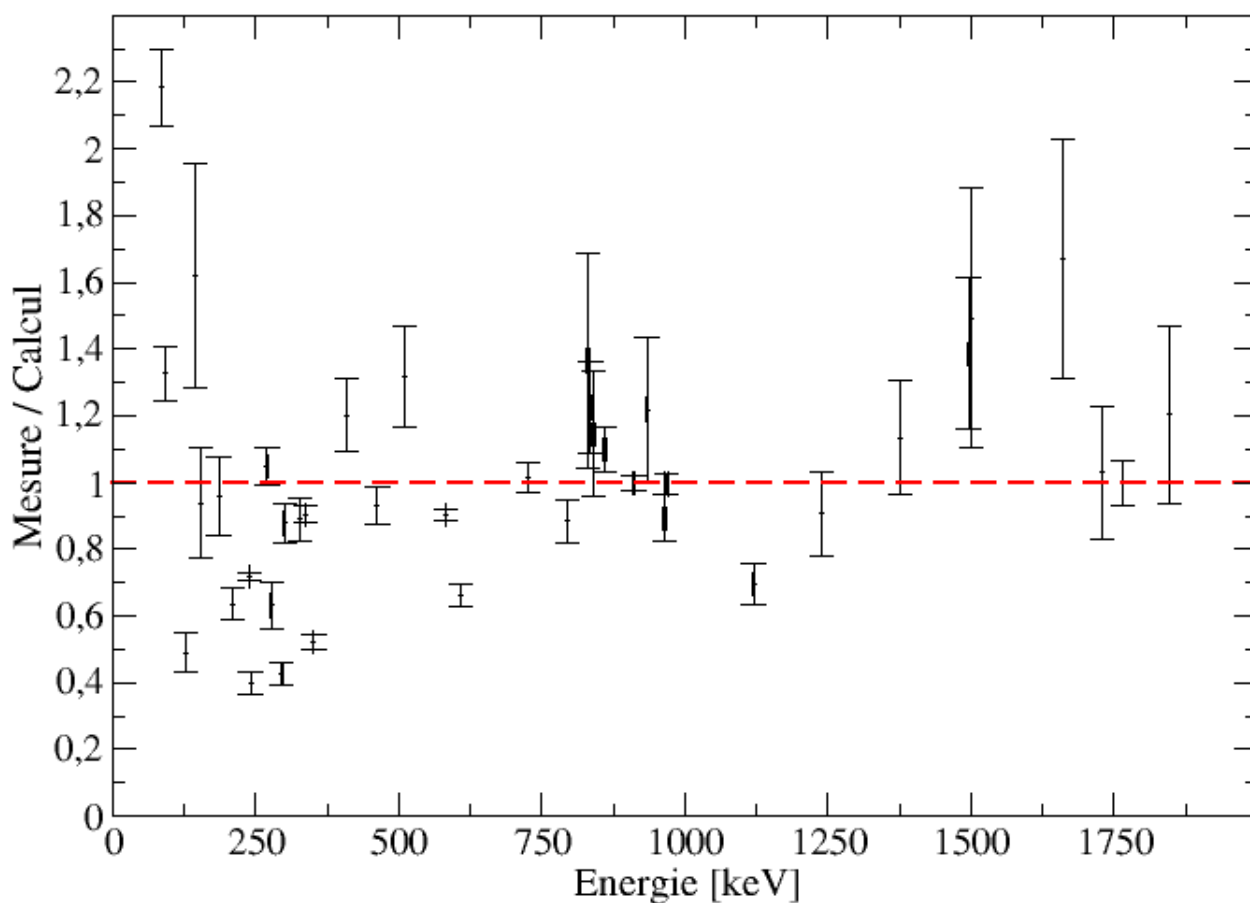


FIGURE 5.7 – Rapport spectre mesuré / spectre calculé

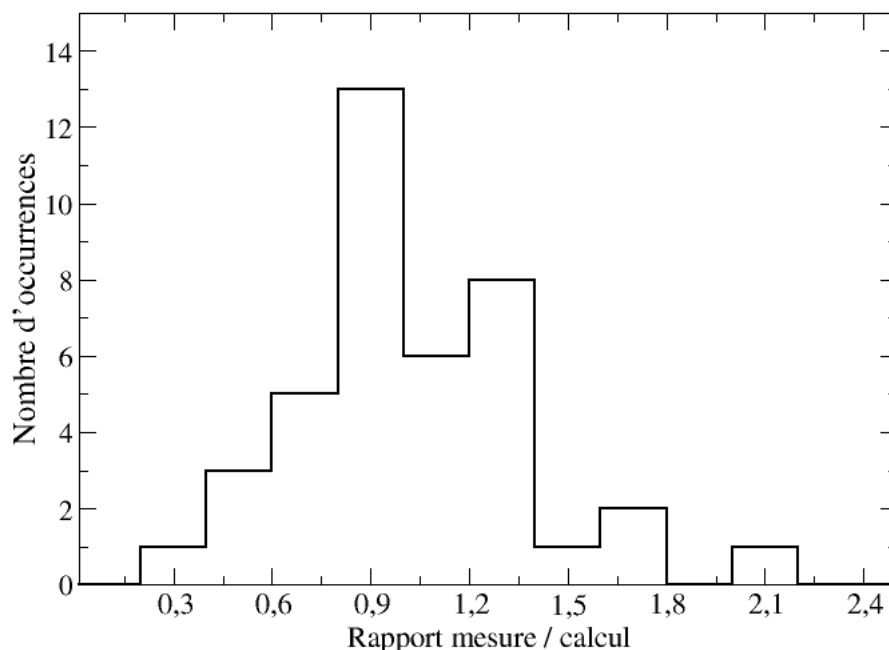


FIGURE 5.8 – Histogramme d'occurrences

5.3.2 Benchmark avec CESAR

5.3.2.1 Présentation de CESAR

Le code CESAR [ea06] pour **C**ode d' **E**volution **S**implifié **A**ppliqué au **R**etraitemment est un code développé conjointement par le CEA et la COGEMA, les premiers utilisateurs de ce code furent les laboratoires de l'usine de retraitement de La Hague pour entre autres, caractériser les combustibles usés et les matières sortantes (Plutonium, Uranium, déchets). Ce code permet de connaître les inventaires de plus de 100 noyaux lourds, 200 produits de fissions, et 150 produits d'activations. Ces inventaires peuvent être déterminés pendant l'irradiation et sur une période allant de 3 mois à 1.10^6 ans après déchargement. Ceci est réalisé en résolvant les équations de Bateman par inversion de la matrice ($\frac{d\vec{N}}{dt} = A\vec{N}$) connaissant l'inventaire à la fin de l'irradiation. L'évolution du combustible lors de l'irradiation est calculée en résolvant ces mêmes équations (par méthode Runge Kutta) mais cette fois-ci il faut prendre

5.3. VALIDATIONS γ

les réactions nucléaires en compte, et donc disposer des sections efficaces moyennes et flux moyens afin d'ajouter aux équations les termes de réaction neutronique. Ces données, qui dépendent du type de réacteur, du type de combustible (UOX, MOX ...), de l'enrichissement et du temps, sont calculées par les codes de transports neutroniques du CEA : APOLLO (spectre thermique) et ERANOS (spectre rapide), puis incorporées dans des bases de données (cryptées), appelées bibliothèques et lisibles par CESAR. A partir de ces inventaires CESAR est à même de calculer l'activité, la puissance résiduelle, la radio-toxicité et les spectres gamma et neutron. Les données nucléaires nécessaires à ces calculs (demi-vie, rapport de branchement, rendement de fission, énergie et intensité des gamma, etc) proviennent de la base JEFF3.1.1 pour les actinides et les produits de fissions. Cette base est constituée de données provenant de ENSDF, NUBASE, DDEP (données accessibles au format ENSDF sur le site internet du Laboratoire National Henri Becquerel), UKHEDD-2 et UKPADD-6 [MK09].

Il est proposé ici de réaliser une comparaison entre les codes CESAR et MURE/-CHARS . Ce benchmark consiste en la comparaison du spectre gamma d'un combustible utilisé pour différents temps de refroidissement, le tableau 5.2 indique les données de départ utilisées par les deux codes.

Tableau 5.2 – Données d'entrée du benchmark

Réacteur	REP 17x17
Puissance thermique	33.3 $MW.tMLi^{-1}$
Combustible	UOx
Enrichissement ^{235}U	5 %
Taux de combustion	55 $GW.j.tMLi^{-1}$
Nombre de cycles	5
Temps d'irradiation par cycle	330 jours
Temps inter-cycle	35 jours

Calcul avec CESAR version 5.33 : Utilisation de la bibliothèque *UOX REP 17x17 WES STANDARD JEFF3.1.1, CEA2005V4.1.1*

Calcul avec MURE / CHARS : Un calcul assemblage REP 17x17 a été effectué avec les mêmes conditions (géométrie, matériaux, températures, densité, conditions miroirs...) que celles définies en 2.1.3.2 à l'exception de ce qui a été explicité dans le tableau 5.2. Une fois ce calcul d'évolution réalisé à l'aide du code MURE (cf. section 1.4.2 de l'introduction sur la présentation du code MURE), l'interface graphique

d'exploitation des résultats MureGui, qui sera décrite dans la section 5.6.1, permet de calculer, entre autres les inventaires et les spectres γ au cours du refroidissement.

Dans un premier temps le calcul MURE d'évolution du combustible a été réalisé avec les sections efficaces et les rendements de fissions de la base de données américaine ENDF7.1 (choix par défaut de MURE). Puis, afin de se rapprocher au plus près de la bibliothèque CESAR (calculé par APOLLO), le même calcul a été fait en utilisant les sections efficaces et les rendements de fissions issus de la base européenne JEFF3.1.1. La figure 5.9 représente les résultats obtenus, à savoir les spectres gammas calculés par CESAR et par MURE/CHARS pour 3 mois, un an, 10 ans et 100 ans après déchargement. La définition énergétique de ces spectres est constante et est de 100 keV par canal, l'intensité est donnée en $\gamma.s^{-1}.tMLi^{-1}$. Les données utilisées par MURE/CHARS proviennent de ENDF7.1 pour ce qui est des sections efficaces et rendements de fission, et de ENSDF pour les données de structures nucléaires. La figure 5.10, qui trace les rapports des spectres calculés par MURE/CHARS sur CESAR pour 3 mois, 1 an, 10 ans après déchargement, permet de mieux appréhender les différences entre les résultats des deux codes. Le rapport des spectres pour 100 ans présente de grandes disparités et sera détaillé séparément.

5.3. VALIDATIONS γ

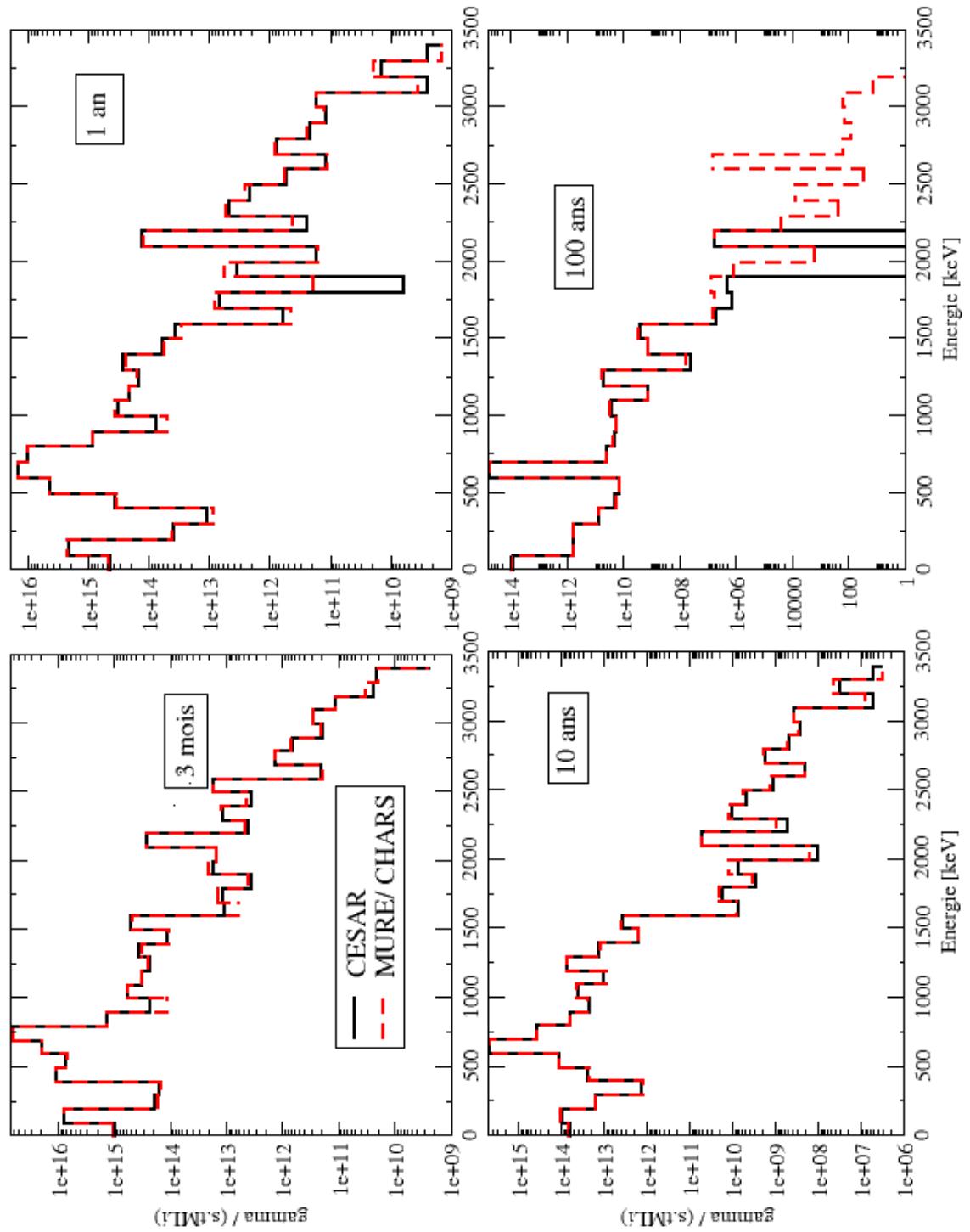


FIGURE 5.9 – Comparaison des spectres γ calculés par MURE/CHARS et par CESAR

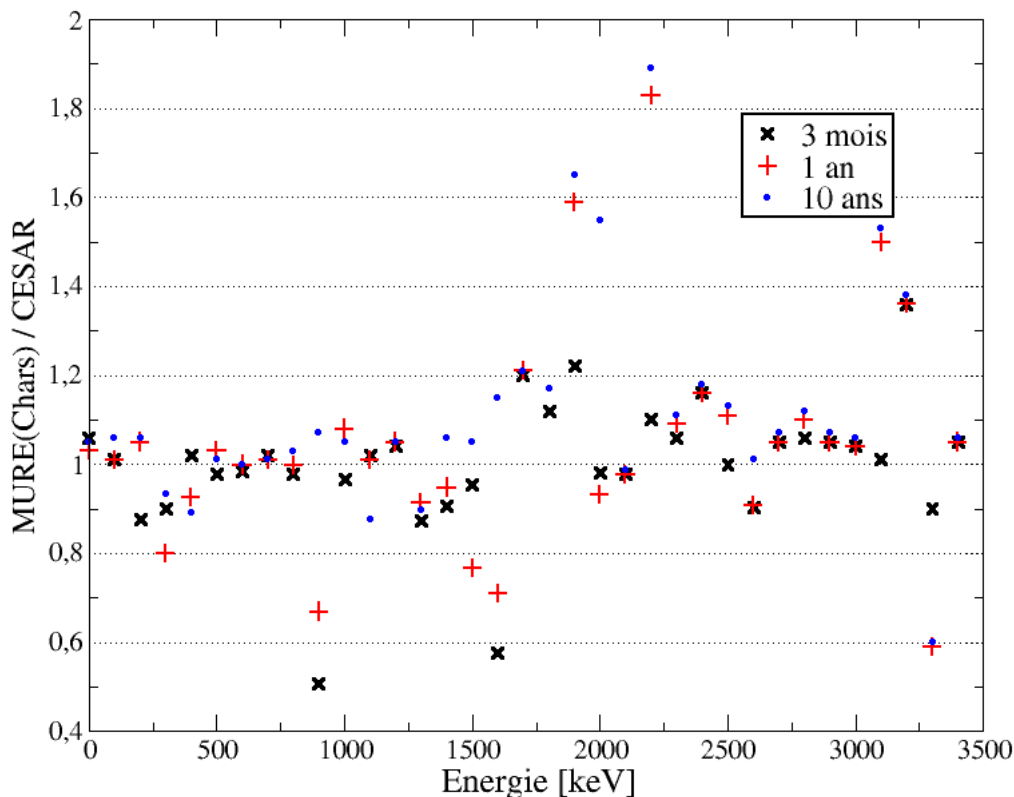


FIGURE 5.10 – Rapport des spectres : MURE(ENDF,ENSDF)/CESAR

Le tableau 5.3 indique la moyenne, ainsi que l'écart type, des rapports des spectres pour différentes données nucléaires utilisées par le calcul MURE/CHARS. Si les valeurs moyennes sont relativement proches de 1 pour les temps considérés, en revanche les écarts-types (calcul MURE/ CHARS avec ENDF7.1 et ENSDF) sont grands. Ces écarts s'estompent légèrement lorsque le calcul MURE utilise les données JEFF3.1.1 (cf. tableau 5.3 et figure 5.11) mais restent importants à haute énergie. De plus, dans la gamme d'énergie [1800 ; 1900 keV] et pour un temps de refroidissement de 1 an, le calcul MURE/CHARS surestime d'un facteur 30 le calcul CESAR. (cette valeur de rapport de spectre n'a pas été prise en compte dans le calcul des moyennes et écarts types et n'apparaît pas dans les figures de rapport de spectre). En utilisant l'utilitaire de recherche d'émetteurs de MureGui (cf. 5.6.1), il est apparu que le ^{106}Rh est le principale émetteur à cette énergie. En comparant les données de structures nucléaires ENSDF à celles utilisées par JEFF3.1.1 (DDEP pour ce noyau) pour ce noyau, il s'est avéré qu'elles présentent de très grands écarts entre elles (cf figure 5.12). De plus, aucune raie n'est émise par le ^{106}Rh dans la gamme d'éner-

5.3. VALIDATIONS γ

gie [1800 ;1900 keV] selon JEFF3.1.1 au contraire de ENSDF. Ainsi, en utilisant les données du ^{106}Rh disponibles sur le site internet du Laboratoire Nationale Henri Becquerel au format ENSDF, on obtient la courbe de rapport des spectres 5.13 et la dernière ligne du tableau 5.3 qui permettent d'affirmer que les deux codes sont en accord sur une période de 3 mois à 10 ans (du moins si les données nucléaires utilisées sont proches).

Tableau 5.3 – Moyennes et écarts types des valeurs de rapport de spectres MURE/-CESAR pour différents jeux de données utilisées par MURE

Temps après déchargement	3 mois	1 an	10 ans
ENDF7.1 / ENSDF			
Moyenne	0.997	1.044	1.115
Écart-type	0.152	0.239	0.235
JEFF 3.1.1/ ENSDF			
Moyenne	1.049	1.075	1.077
Écart-type	0.081	0.196	0.235
JEFF 3.1.1/ ENSDF & DDEP (^{106}Rh)			
Moyenne	1.025	1.019	1.049
Écart-type	0.034	0.028	0.109

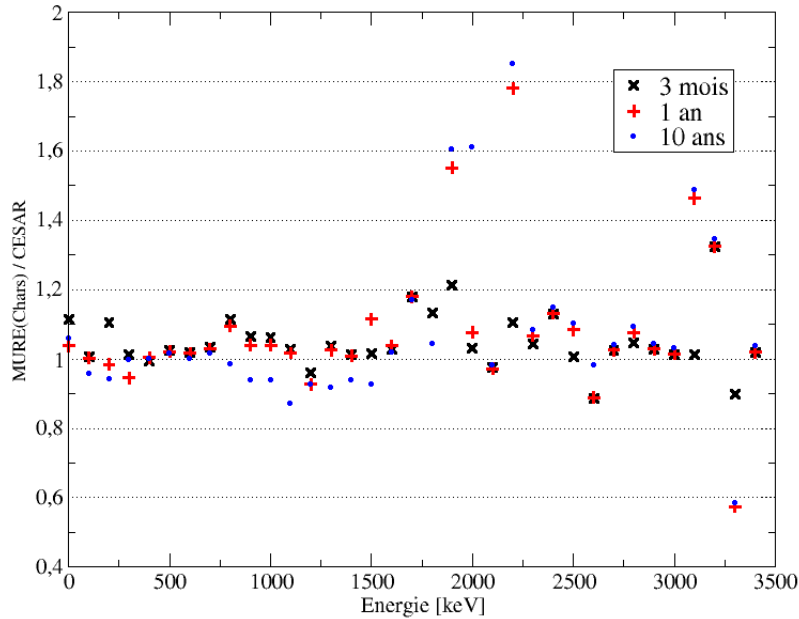


FIGURE 5.11 – Rapport des spectres : MURE(JEFF3.1.1,ENSDF)/CESAR

5.3. VALIDATIONS γ

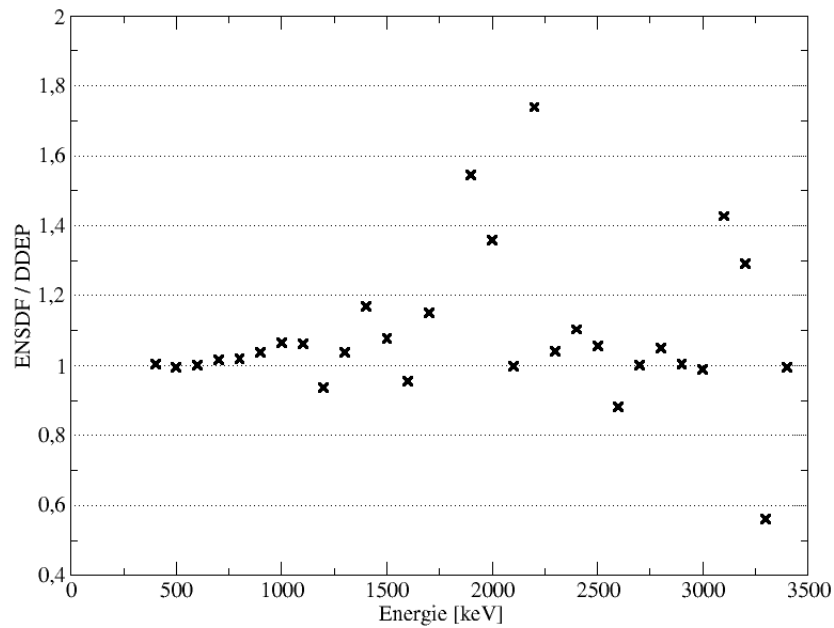


FIGURE 5.12 – Rapport des spectres du ^{106}Rh calculé avec ENSDF sur DDEP

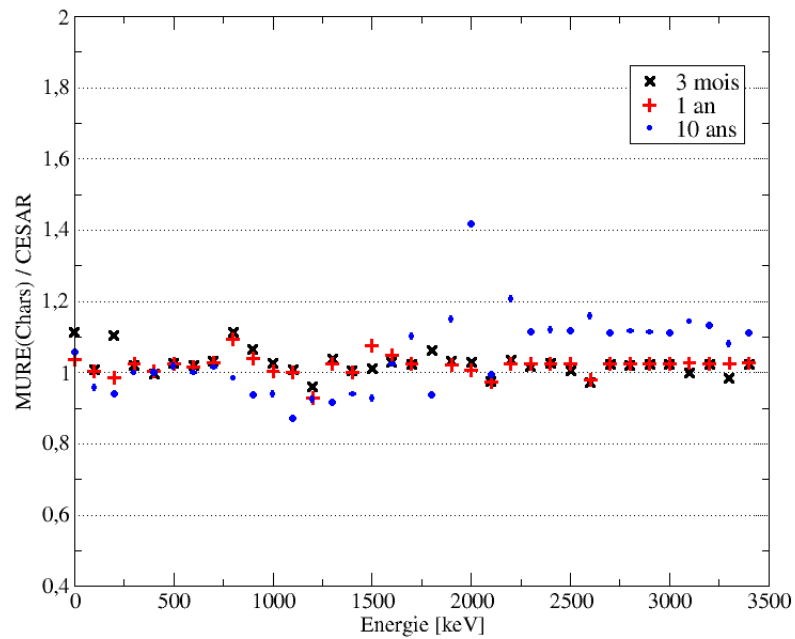


FIGURE 5.13 – Rapport des spectres : MURE(JEFF3.1.1,ENSDF & DDEP(Rh106))/CESAR

En revanche de grandes disparités existent au bout de 100 ans après le déchar-

5.3. VALIDATIONS γ

gement (cf. tableau 5.4) pour des énergies supérieures à 1700 keV. Ceci s'explique par le fait que les principaux contributeurs à ces énergies, à l'exception du ^{90}Y , ne sont pas présents dans le calcul CESAR (bien qu'ils soient dans les bases de données de ce code). Les noyaux en question sont les suivants : ^{214}Bi , ^{208}Tl , ^{234}Pa , $^{234}\text{Pa}^m$ et dans une moindre mesure ^{240}Np , ^{210}Tl , ^{228}Ac et ^{102}Rh .

Ce benchmark a été l'occasion d'implémenter dans le code MURE une méthode permettant de prendre en compte la synthèse de noyaux isomériques par réaction (n, γ) (cf. section 2.2.1 du chapitre 1) et d'en estimer l'exactitude en comparant avec CESAR le total des gammas émis pour les isomères suivants : $^{148}\text{Pm}^m$, $^{110}\text{Ag}^m$, $^{242}\text{Am}^m$ et $^{166}\text{Ho}^m$. Le tableau 5.5 résume les résultats (3 mois après déchargement). Les calculs ont été réalisés avec les sections efficaces et rendements de fissions de ENDF7.1 puis de JEFF3.1.1 par MURE. Il est intéressant de remarquer que le $^{166}\text{Ho}^m$ est 35 fois plus présent lorsque JEFF 3.1.1 est utilisé et est en accord avec CESAR. La cause en est que la base ENDF 7.1 dispose de sections efficaces pour cet isomère (à la différence de JEFF 3.1.1) ce qui provoque plus de disparitions (capture, $(n, 2n)$) de ce noyau que lorsque l'on utilise la base ENDF. On peut donc suggérer que CESAR (ou plutôt APOLLO) le surestime, ainsi que MURE, si JEFF est utilisée.

5.3. VALIDATIONS γ

Tableau 5.4 – Intensités calculées par CESAR et par MURE(JEFF3.1.1 & ENSDF). 100 ans de refroidissement

Energie Basse (keV)	MURE(CHARS)	CESAR	Rapport MURE / CESAR
0	$8.690.10^{13}$	$8.429.10^{13}$	1.031
100	$5.675.10^{11}$	$5.854.10^{11}$	0.969
200	$5.650.10^{11}$	$5.525.10^{11}$	1.023
300	$7.893.10^{10}$	$7.726.10^{10}$	1.022
400	$2.334.10^{10}$	$2.087.10^{10}$	1.118
500	$1.264.10^{10}$	$1.327.10^{10}$	0.952
600	$5.388.10^{14}$	$5.355.10^{14}$	1.006
700	$3.525.10^{10}$	$3.761.10^{10}$	0.937
800	$1.954.10^{10}$	$2.082.10^{10}$	0.939
900	$1.637.10^{10}$	$1.729.10^{10}$	0.947
1000	$2.481.10^{10}$	$2.654.10^{10}$	0.935
1100	$1.248.10^9$	$1.237.10^9$	1.009
1200	$4.725.10^{10}$	$5.100.10^{10}$	0.927
1300	$4.989.10^7$	$4.225.10^7$	1.181
1400	$1.304.10^9$	$1.298.10^9$	1.005
1500	$2.431.10^9$	$2.623.10^9$	0.927
1600	$6.002.10^6$	$4.835.10^6$	1.241
1700	$5.332.10^6$	$1.345.10^6$	3.965
1800	$6.846.10^6$	$2.076.10^6$	3.298
1900	$1.232.10^6$	$2.024.10^{-17}$	$6.087.10^{22}$
2000	$1.593.10^3$	$1.955.10^{-19}$	$8.150.10^{21}$
2100	$5.472.10^6$	$5.481.10^6$	$9.984.10^{-01}$
2200	$2.393.10^4$	$1.426.10^{-18}$	$1.678.10^{22}$
2300	$2.274.10^2$	$2.903.10^{-17}$	$7.834.10^{18}$
2400	$6.992.10^3$	$1.329.10^{-17}$	$5.263.10^{20}$
2500	$2.900.10^1$	$2.104.10^{-01}$	$1.378.10^{02}$
2600	$5.842.10^6$	$5.358.10^{-19}$	$1.090.10^{25}$
2700	$1.424.10^2$	$4.757.10^{-18}$	$2.993.10^{19}$
2800	$7.881.10^1$	$1.318.10^{-18}$	$5.980.10^{19}$
2900	$1.294.10^2$	$7.096.10^{-19}$	$1.824.10^{20}$
3000	$1.544.10^2$	$9.992.10^{-19}$	$1.546.10^{20}$
3100	$1.277.10^1$	$1.448.10^{-20}$	$8.821.10^{20}$
3200	$7.052.10^{-01}$	$8.689.10^{-20}$	$8.117.10^{18}$
3300	0.000	$1.448.10^{-20}$	0.000
3400	0.000	$9.051.10^{-21}$	0.000

Cette section aura permis de valider le calcul des spectres γ de la matière irradiée.

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

Tableau 5.5 – Comparaison des isomères émetteurs γ produits par (n, γ) calculés par CESAR et par MURE à 3 mois après déchargement

Noyaux	MURE ($\gamma.s^{-1}.tMLi^{-1}$)	CESAR ($\gamma.s^{-1}.tMLi^{-1}$)	MURE / CESAR
	ENDF 7.1		
$^{148}Pm^m$	$1.01.10^{15}$	$9.63.10^{14}$	1.05
$^{110}Ag^m$	$6.28.10^{14}$	$5.51.10^{14}$	1.14
$^{242}Am^m$	$1.96.10^9$	$2.47.10^9$	0.79
$^{166}Ho^m$	$4.88.10^7$	$1.63.10^9$	0.03
	JEFF 3.1.1		
$^{148}Pm^m$	$1.04.10^{15}$	$9.63.10^{14}$	1.08
$^{110}Ag^m$	$6.68.10^{14}$	$5.51.10^{14}$	1.21
$^{242}Am^m$	$1.94.10^9$	$2.47.10^9$	0.78
$^{166}Ho^m$	$1.68.10^9$	$1.63.10^9$	1.03

Cependant le schéma de calcul (évolution MURE - calcul des inventaires hors flux - calcul des spectre gamma) est dépendant des données nucléaires (sections efficaces - rendements de fissions - données de structure nucléaire) sont les principales causes des écarts constatés entre MURE/CHARS et CESAR .

5.4 Spectres de neutrons

Les sections précédentes ont présenté le calcul des spectres gamma de la matière irradié, mais pour certains cas les neutrons représentent une source d'exposition externe non négligeable qu'il convient de calculer. Lorsque la matière n'est pas assujettie à des fissions induites, les principales sources de neutrons proviennent des fissions spontanées de noyaux lourds que sont certains isotopes du californium, du curium, de l'americium, du plutonium, du neptunium de l'uranium, et du thorium. Ces neutrons peuvent également être issus de réactions nucléaires (α, n) sur des noyaux légers tels que certains isotopes de l'oxygène. Ce qui suit expose la façon dont les spectres en énergie de ces neutrons sont calculés, puis une validation des calculs par comparaison avec des mesures et le code SOURCES-4C sera proposée.

5.4.1 Fission spontanée

Le spectre de neutrons émis par fission spontanée ou induite est donné en bonne approximation par un spectre de Watt. C'est de cette façon que sont calculés par

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

MCNP5 les spectres de neutrons spontanés du ^{240}Pu , ^{242}Pu , ^{242}Cm , ^{244}Cm et du ^{252}Cf [Tea03]. C'est cette approche qui a été utilisée ici. Le nombre de neutrons χ produits par la fission spontanée à une énergie E d'un noyau est, en considérant un spectre de Watt, donné par l'équation 5.5 :

$$\chi(E) = \bar{\nu}.R.\exp\frac{-E}{a}\sinh\sqrt{bE} \quad (5.5)$$

avec $\bar{\nu}$ le nombre moyen total (prompts et retardés) de neutrons émis par fission, R le rapport de branchement de la fission spontanée, a et b sont des paramètres qui dépendent, comme $\bar{\nu}$ et R , du noyau considéré. Les valeurs de $\bar{\nu}$ proviennent de la base ENDF 7.1, les rapports de branchements de ENSDF et les valeurs de a et b sont issues de [Sho01]. Le lecteur pourra trouver en annexe A ces données pour les noyaux pris en compte : il y en a 31.

5.4.2 Réactions (α , n)

5.4.2.1 Spectre alpha

Pour calculer les spectres neutrons émis par réaction (α , n) il est nécessaire de connaître en premier lieu le projectile. Le spectre α émis par un échantillon est calculé à l'aide des inventaires en émetteurs α , qui peuvent être, soit déjà connus, soit calculés par MURE, et des données de structure nucléaire issues de la base de donnée ENSDF (cf. 5.1). Le spectre α d'un émetteur A_ZX qui émet n raies d'intensités I_r (proportion du total des α émis par ce noyau) est donné par :

$$\chi_\alpha(E) = \lambda_{^A_ZX}.N_{^A_ZX}.R_\alpha \sum_r^n I_r.f(E - E_r)$$

avec $f(E - E_r)$ une fonction qui vaut 1 si $E = E_r$ et 0 sinon, R_α le rapport de branchement de la décroissance, $\lambda_{^A_ZX}$ et $N_{^A_ZX}$ constante de décroissance et nombre de noyaux A_ZX .

5.4.2.2 Ralentissement des α

Lors du ralentissement dans l'échantillon ces particules α ont la possibilité de provoquer des réactions (α , n). La probabilité $p(E_\alpha)$ qu'un α d'énergie E_α induise

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

une réaction (α, n) dans un matériau constituée de N noyaux identiques A_ZX lors de son parcours dx est donnée par :

$$p(E_\alpha) = N \cdot \sigma(E_\alpha) \cdot dx \quad (5.6)$$

Avec $\sigma(E_\alpha)$ la section efficace (α, n) du noyau A_ZX . L'équation 5.6 peut s'écrire en faisant apparaître le pouvoir d'arrêt :

$$p(E_\alpha) = N \cdot \frac{\sigma(E_\alpha)}{dE/dx} \cdot dE \quad (5.7)$$

Cette probabilité pour un ralentissement de E_α à E_0 devient :

$$P(E_\alpha, E_0) = N \cdot \int_{E_0}^{E_\alpha} \frac{\sigma(E)}{-dE/dx} \cdot dE \quad (5.8)$$

Si l'on fait l'hypothèse (et on l'a faite) que la particule α a un libre parcours moyen faible devant les dimensions de l'échantillon (approximation de la cible épaisse) alors 5.8 devient :

$$P(E_\alpha, 0) = N \cdot \int_0^{E_\alpha} \frac{\sigma(E)}{-dE/dx} \cdot dE \quad (5.9)$$

5.4.2.3 Calcul de l'énergie du neutron

Une fois que la réaction ${}^A_ZX + {}^4_2\alpha \rightarrow {}^{A+3}_{Z+2}Y + {}^1_0n$ a lieu (cf. schéma 5.14), il convient de calculer l'énergie du neutron.

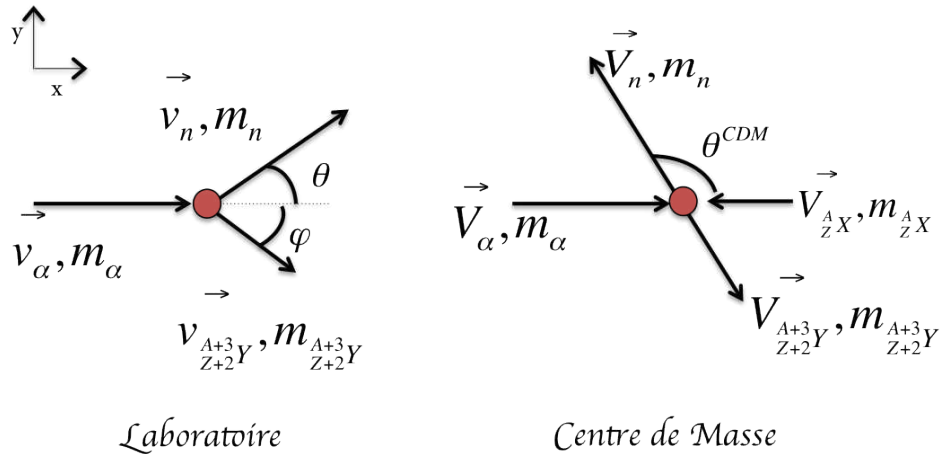


FIGURE 5.14 – Schéma de la réaction (α, n)

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

Étant donnés les énergies des alpha de décroissances, on se place dans un formalisme non relativiste. La vitesse du centre de masse avant la collision V_{CDM} est donnée par :

$$V_{CDM} = \frac{m_\alpha v_\alpha}{m_\alpha + m_{\frac{A}{Z}X}}$$

Les vitesses de l'alpha V_α et de $\frac{A}{Z}X$ $V_{\frac{A}{Z}X}$ dans le centre de masse sont ($V = v - V_{CDM}$) :

$$V_\alpha = \left(\frac{m_{\frac{A}{Z}X}}{m_{\frac{A}{Z}X} + m_\alpha} \right) v_\alpha \quad (5.10)$$

et

$$V_{\frac{A}{Z}X} = \left(\frac{m_\alpha}{m_{\frac{A}{Z}X} + m_\alpha} \right) v_\alpha \quad (5.11)$$

Selon la conservation de l'énergie dans le centre de masse on a $E_\alpha + m_{alpha} + E_{\frac{A}{Z}X} + m_{\frac{A}{Z}X} = E_n + m_n + E_{\frac{A+3}{Z+2}Y} + m_{\frac{A+3}{Z+2}Y} + E^*$ avec E^* l'énergie d'excitation du noyau $\frac{A+3}{Z+2}Y$. Sachant que le Q de réaction est $Q = m_\alpha + m_{\frac{A}{Z}X} - m_n + m_{\frac{A+3}{Z+2}Y}$ on obtient :

$$E_n = Q - E^* + E_\alpha + E_{\frac{A}{Z}X} - E_{\frac{A+3}{Z+2}Y} \quad (5.12)$$

Selon la conservation de l'impulsion dans le CDM et en utilisant l'hypothèse d'une émission du neutron isotrope dans le CDM, sur l'axe y on a :

$$V_{\frac{A+3}{Z+2}Y} = \frac{m_n}{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y}} V_n \quad (5.13)$$

En élevant au carré l'équation 5.10 et en la multipliant par $\frac{m_\alpha}{2}$ et en faisant de même avec 5.11 (mais $m_{\frac{A}{Z}X}$ à la place de m_α) puis en additionnant les deux on obtient :

$$E_\alpha + E_{\frac{A}{Z}X} = E_\alpha^{lab} \frac{m_{\frac{A}{Z}X}}{m_{\frac{A}{Z}X} + m_\alpha}$$

L'énergie cinétique du noyau $\frac{A+3}{Z+2}Y$ dans le CDM est donnée à l'aide de l'équation 5.13 par :

$$E_{\frac{A+3}{Z+2}Y} = \frac{m_n}{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y}} E_n$$

En substituant $E_{\frac{A+3}{Z+2}Y}$ et $E_\alpha + E_{\frac{A}{Z}X}$ dans 5.12 et en isolant E_n on obtient :

$$E_n = E_\alpha^{lab} \frac{m_{\frac{A}{Z}X}}{m_{\frac{A}{Z}X} + m_\alpha} \frac{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y}}{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y} + m_n} + (Q - E^*) \frac{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y}}{m_{\frac{A+3}{Z+2}Y} + m_n}$$

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

Finalement on obtient la vitesse du neutron dans le centre de masse à laquelle on ajoute la vitesse du centre de masse ce qui permet d'avoir la vitesse du neutron dans le laboratoire puis son énergie dans le laboratoire. Soit :

$$E_n^{lab\pm} = \frac{m_n}{2} \left(\sqrt{\frac{2E_\alpha^{lab}}{m_\alpha}} \left(\frac{m_\alpha}{m_\alpha + m_Z^A X} \right) \pm \sqrt{\frac{2(Q - E^*)m_{Z+2}^{A+3}Y}{m_n(m_{Z+2}^{A+3}Y + m_n)} + \frac{2E_\alpha^{lab}m_Z^A X m_{Z+2}^{A+3}Y}{m_n(m_Z^A X + m_\alpha)(m_{Z+2}^{A+3}Y + m_n)}} \right)^2 \quad (5.14)$$

L'hypothèse d'une distribution angulaire isotrope dans le CDM a été faite, ce qui revient à considérer que l'énergie du neutron dans le laboratoire est distribuée de façon homogène entre une valeur maximum E_n^{lab+} et minimum E_n^{lab-} . La figure 5.15 trace, à titre d'exemple, l'énergie minimum et maximum du neutron en fonction de l'énergie de l'alpha incident lors de la réaction $\alpha + {}^{18}\text{O} \rightarrow {}^{21}\text{Ne}^f + n$ (avec f pour produit dans son état fondamental). On peut voir que cette réaction est à seuil (environ 0.85 MeV).

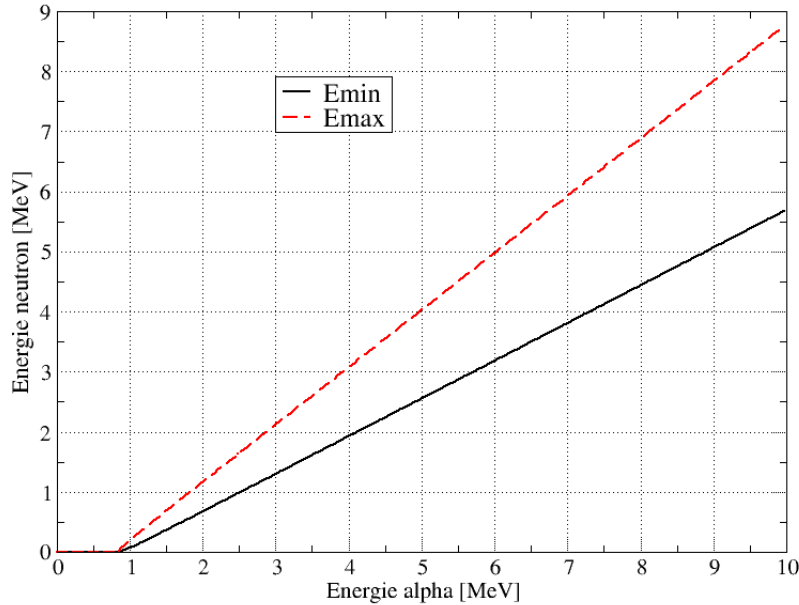


FIGURE 5.15 – Énergie minimum et maximum du neutron en fonction de l'énergie de l' α

5.4.2.4 Construction du spectre neutron :

Le spectre alpha est défini en 9000 groupes d'énergie tels que $E_{\alpha}^{a+1} - E_{\alpha}^a = 1\text{keV}$ (avec a l'indice du groupe) soit une énergie maximum de 9MeV. Cette définition énergétique très fine est nécessitée par le fait que dans l'équation 5.9 la fonction à intégrer ($\frac{\sigma(E)}{dE/dx}$) présente des fluctuations importantes provenant de la section efficace (e.g $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$, figure 5.16).

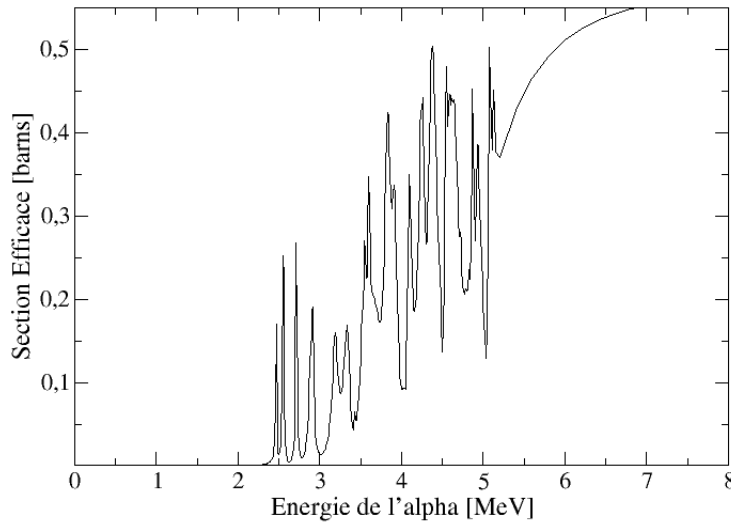


FIGURE 5.16 – Section efficace de la réaction $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$

La définition énergétique du spectre neutron est établie par l'utilisateur. La contribution au spectre neutronique du groupe d'énergie des neutrons g $[E_g, E_{g+1}[$ qui proviennent du ralentissement d'un alpha d'énergie E_{α} sur $dE_{\alpha} = E_{\alpha}^{a+1} - E_{\alpha}^a = 1\text{keV}$ et ayant créée un neutron par réaction (α, n) au cours de ce ralentissement sur un noyau i laissant le noyau sortant sur un niveau l est donnée par :

$$C_{i,l,g}(E_{\alpha}) = p_i(E_{\alpha}) \cdot f_{i,l}(E_{\alpha}) \frac{E_g - E_{g+1}}{E_n^+(E_{\alpha}) - E_n^-(E_{\alpha})} G_{i,l,g}(E_{\alpha}) \quad (5.15)$$

- Avec $p_i(E_{\alpha})$ la probabilité (définie dans l'équation 5.7) qu'un alpha d'énergie E_{α} ralentissant sur dE_{α} provoque une réaction (α, n) sur un noyau i .

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

- $f_{i,l,g} = \frac{\sigma_i^l}{\sigma_i^{Tot}}$ la proportion des réactions sur ce noyau i laissant le noyau de sortie dans un état l . Ce rapport n'est en général pas disponible dans les bases de données nucléaires mais peut-être calculé à l'aide de codes tel que Talys[AK08].
- $\frac{E_g - E_{g+1}}{E_n^+(E_\alpha) - E_n^-(E_\alpha)}$ la part des neutrons de l'intervalle $[E_n^-; E_n^+]$ (défini par l'équation 5.14) contenue dans le groupe g .
- $G_{i,l,g}(E_\alpha)$ la proportion du groupe g contenue dans $[E_n^-; E_n^+]$ qui vaut 1 si $g \in [E_n^-; E_n^+]$ 0 sinon, $\frac{E_n^+ - E_n^-}{E_g - E_{g+1}}$ si $[E_n^-; E_n^+] \in g$ et $\frac{E_{g+1} - E_n^-}{E_{g+1} - E_g}$ ou $\frac{E_n^+ - E_g}{E_{g+1} - E_g}$ si le groupe g est à cheval sur une borne de $[E_n^-; E_n^+]$.

Le spectre de neutron (α, n) d'un échantillon composé de n isotopes différents pouvant subir une telle réaction et dont chacun des noyaux produits (i) par la réaction peut être peuplé dans l_i niveaux est donné par :

$$\chi = \sum_r \sum_i^n \sum_l^{l_i} \sum_g \sum_0^{E_{\alpha_r}} C_{i,l,g}(E_\alpha) A_r \quad (5.16)$$

Avec A_r le nombre de particules α par seconde produit par l'échantillon à une énergie E_{α_r} .

Étant donné que, durant cette étude, le calcul de spectre des neutrons produits par réaction (α, n) a été appliqué à des combustibles oxydes usés ou des poudres d'oxydes (d'uranium et/ou plutonium et/ou thorium) les noyaux cibles pris en compte se limitent à l' ^{17}O et ^{18}O . Les sections efficaces des réactions $^{17}\text{O}(\alpha, n)^{20}\text{Ne}$ et $^{18}\text{O}(\alpha, n)^{21}\text{Ne}$ proviennent de la base JENDL-AN compilée à l'aide de plusieurs mesures [TM06]. Les proportions des réactions sur les noyaux i laissant le noyau produit sur un état l ($f_{i,l,g}$) ont été calculées à l'aide de TALYS [AK08] pour un certain nombre de niveaux listés dans le tableau 5.6, les résultats sont donnés en annexe sous forme de figures (cf. annexe C).

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

Tableau 5.6 – Liste des niveaux du noyau produit pris en compte dans CHARS et énergies seuils des α amenant à ces niveaux

Réaction	E* du noyau produit [MeV]	E_{seuil} [MeV]
$^{17}O(\alpha, n)^{20}Ne$	0	0
	1.634	1.294
	4.248	4.522
	4.968	5.412
	5.621	6.220
	5.785	6.420
$^{18}O(\alpha, n)^{21}Ne$	0	0.851
	0.351	1.280
	1.746	2.955
	2.789	4.259
	2.794	4.269
	2.867	4.354
	3.662	5.327
	3.734	5.415
	3.883	5.597
	4.432	6.268
	4.524	6.381

Le tableau 5.6 fait figurer les énergies seuils des α , ainsi que les énergies d'excitations pour les différents niveaux du noyau i produit pris en compte dans le calcul. Ces noyaux peuvent être peuplés dans des niveaux d'énergies supérieurs à ceux présentés dans le tableau 5.6. Ces derniers ne sont pas pris en compte et $\sum_l^L f_{i,l} = 1$ à toutes les énergies des α si bien que la non prise en compte de ces niveaux ne change pas le nombre total des neutrons émis mais l'allure du spectre. Il est important de noter que les α émis par du combustible nucléaire sont pour la plupart compris dans une gamme d'énergie allant de 4 à 7 MeV environ, à l'exception notable du ^{212}Po , descendant de l' ^{232}U (encore lui), qui possède une raie à 8.8MeV. Pour s'en convaincre le lecteur peut se référer à la figure 5.22 qui trace le spectre alpha au cours du temps (de 1 à 100 ans après déchargement) d'un combustible REP UOx et REP ThU.

5.4. SPECTRES DE NEUTRONS

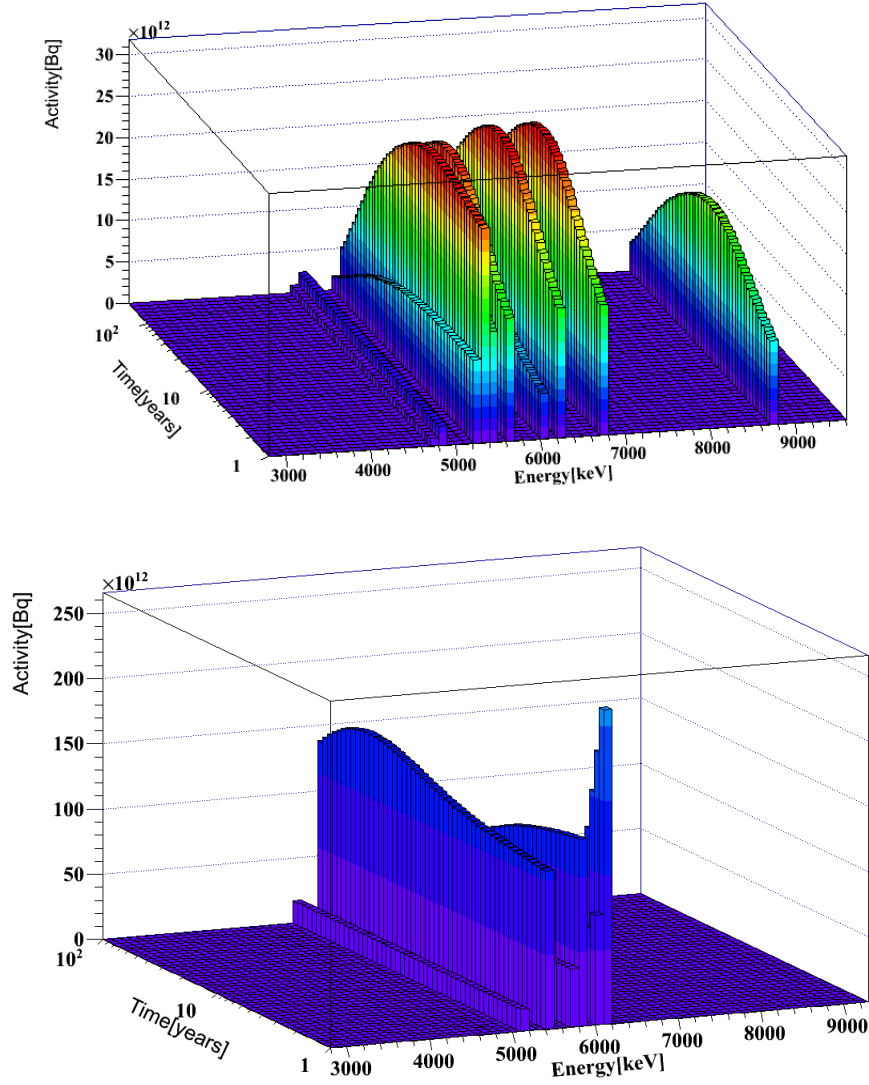


FIGURE 5.17 – Spectres α au cours du temps d'un combustible usé ThU (haut) et UOx (bas)

Le pouvoir d'arrêt, nécessaire pour calculer la probabilité de réaction lors du ralentissement des alpha, a été calculé à l'aide de SRIM [Zie] pour une composition de dioxyde d'uranium UO_2 qui sera utilisée quelque soit l'échantillon ce qui est une bonne approximation pour des échantillons du type $ThUO_2, PuO_2, ThPuO_2, UPuO_2$.

Neutrons retardés Le code développé possède la capacité de calculer le spectre neutron provenant des neutrons retardés (β^-N) cependant la base de donnée utilisée

5.5. VALIDATION NEUTRON

pour le faire (ENSDF) permet de calculer ces spectres pour seulement 6 noyaux que sont ^{85}As ^{87}Br ^{88}Br ^{95}Rb ^{135}Sb ^{137}I . En effet, à l'heure actuelle, seuls ces 6 noyaux possèdent à la fois des données sur l'énergie et l'intensité de ces neutrons. D'autres bases possèdent beaucoup plus de noyaux (ENDF,JEFF ...). Cependant, si ces neutrons sont d'une importance capitale pour la neutronique du coeur, ils ne représentent que quelques centaines de ppm du total des neutrons, leur importance est plus que négligeable dans le cadre d'études de radioprotection.

5.5 Validation Neutron

5.5.1 Benchmark SOURCES-4C

SOURCES-4C [WPC⁺05] est un code développé par le "Los Alamos National Laboratory" et "TEXAS A & M University" qui fait référence dans le calcul de spectres de neutrons provenant de réactions (α, n), fissions spontanées et neutrons retardés. Un benchmark consistant en la comparaison entre mesures et calculs de spectres neutrons de différents échantillons de dioxyde de plutonium de compositions différentes a été réalisé par E.F Shores du "Los Alamos National Laboratory" [Sho05], on se propose ici d'utiliser ce benchmark pour valider le calcul de terme source neutron.

Tableau 5.7 – Compositions isotopiques(% massique) des échantillons de PuO_2

Isotope	combustible REP			JAERI-1	JAERI-2	ORNL	SRS	PNL	LANL
	Bas	moyen	haut						
^{238}Pu	0.024	0.059	1.574	0.135	0.010	90.37	81.2	0.072	0.0145
^{239}Pu	89.667	82.077	57.342	76.885	95.303	9.02	15	72.4	93.7614
^{240}Pu	9.645	16.297	24.980	19.960	4.543	0.567	2.9	22.7	5.9445
^{241}Pu	0.556	1.231	10.560	2.228	0.135	0.029	0.8	3.89	0.2237
^{242}Pu	0.109	0.336	5.545	0.792	0.007	0.008	0.1	0.97	0.0559
^{241}Am	0.327	0.162	1.159	23400*	3110*	0.01	?	?	762.4*

* ppm

Les adjectifs bas, moyen et haut correspondent à différents taux de combustion

Le tableau 5.7 donne la composition des vecteurs plutonium des différents échantillons en pourcentage massique. Pour le calcul avec CHARS lorsque la somme des proportions ne donne pas 100 % la différence est ajoutée au noyau le plus présent.

5.5. VALIDATION NEUTRON

De plus, comme pour le calcul réalisé par SOURCES-4C, on considère du PuO_2 (donc un plutonium pour deux oxygènes) avec, pour l'oxygène une isotopie naturelle qui est respectivement de 0.004% et 0.2% mol. pour l' ^{17}O et l' ^{18}O (le reste étant de l' ^{16}O), et pour le plutonium les isotopies définies dans le tableau 5.7. Le pouvoir d'arrêt utilisé pour le calcul est celui obtenu à l'aide de SRIM pour de l' UO_2 . Les résultats sont donnés sous forme de figure (fig. 5.18) qui comparent les spectres calculés par CHARS et par SOURCES-4C et par deux tableaux (5.8 et 5.9) qui indiquent les totaux de neutrons mesurés, et calculés par ces deux codes pour les différents échantillons.

Tableau 5.8 – Total des neutrons issus de la mesure et du calcul

Échantillon fs :fission spontanée	mesure $n.s^{-1}$	SOURCES-4C $n.s^{-1}$	CHARS $n.s^{-1}$	différence* SOURCES	différence* CHARS(%)
JAERI 1 fs	184.7 ± 4.8	215	197	16.4	6.41
JAERI 1 (α,n)	157.8 ± 9.8	138	125	-12.5	-20.9
JAERI 1 tot	342.5 ± 8.6	353	321	3.07	-6.19
JAERI 2 fs	42.1 ± 1.1	48	42	14.0	-1.08
JAERI 2 (α,n)	51.3 ± 2.5	54	47	5.26	-7.60
JAERI 2 tot	93.4 ± 2.3	102	89	9.21	-4.66
ORNL tot	$8.6785.10^4 \pm 867$	$8.5258.10^4$	$7.6347.10^4$	-1.76	-12.0
SRS tot	$8.55.10^5 \pm 1.28.10^4$	$8.6713.10^5$	$8.6243.10^5$	1.42	0.87
PNL tot	$2.3.10^5$	$2.39.10^5$	$2.35.10^5$	3.91	2.01
LANL tot		98.9	98.7		-0.21 ^{*1}
*1 $\frac{calcul-mesure}{mesure}$			*1 $\frac{CHARS-SOURCES}{SOURCES}$		

Tableau 5.9 – Comparaison SOURCES CHARS du total des neutrons émis par les échantillons "combustibles REP"

REP	SOURCES-4C $n.s^{-1}g_{oxyde}^{-1}$	CHARS $n.s^{-1}g_{oxyde}^{-1}$	différences % *1
bas	141.3	143.8	1.77
moyen	210.7	214.7	1.88
haut	602.6	621.0	3.05
*1 $\frac{CHARS-SOURCES}{SOURCES}$			

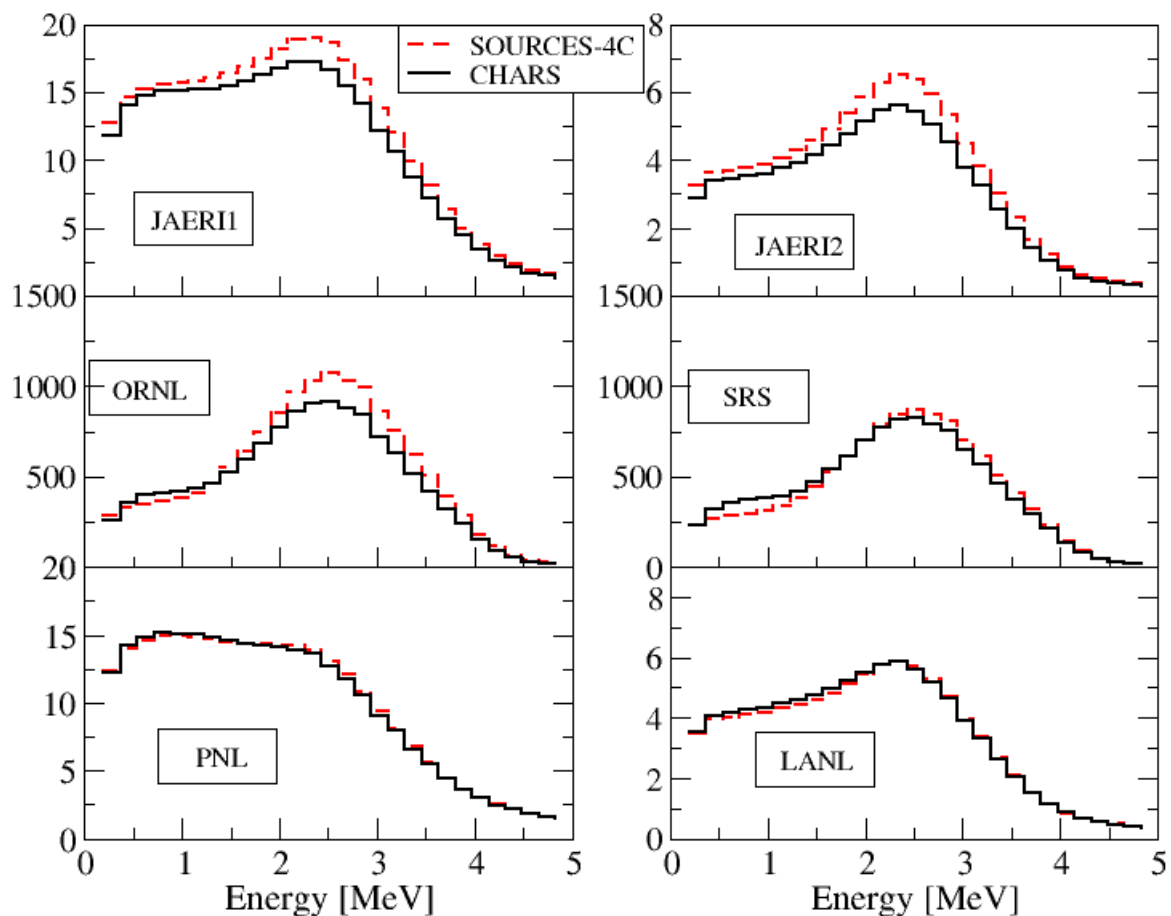


FIGURE 5.18 – Spectres neutrons ($n.s^{-1}g_{oxyde}^{-1}$) calculés par CHARS et SOURCES pour différents échantillons

Le calcul CHARS du nombre total de neutrons émis par ces échantillons est en accord acceptable avec les mesures, les différences vont de -12% à 6.41% et jusqu'à -20.9% pour la composante (α, n) . Les neutrons de fissions spontanées calculés par CHARS sont plus proches des mesures que ne le sont ceux calculés par SOURCES-4C à l'inverse des neutrons de réactions (α, n) (cf. échantillons JAERI du tableau 5.8). Les spectres calculés par CHARS et SOURCES-4C s'entendent plutôt bien (voir figure 5.20).

5.6 Intégration dans MURE : le module CHARS

Les calculs des spectres gamma, beta, alpha et neutron explicités dans ce chapitre ont été incorporés dans le code MURE afin de faciliter la définition énergétique des termes sources pour des calculs en radioprotection. Cette section a pour objet de présenter les possibilités offertes par ce module baptisé CHARS pour *CHaracterization of Radioactive Sources*.



FIGURE 5.19 – Logo de CHARS

Ce module, écrit en C++, est structuré sous forme de classes, une pour chaque type de particule et une classe mère qui regroupe les méthodes et attributs communs. Chacune des classes XSpectrum (X pour alpha, beta, neutron, gamma) possède ses propres méthodes de construction de spectre (définies précédemment dans ce chapitre). La classe mère Spectrum, dont toutes les autres héritent, définit l'objet Spectrum. Cet objet est constitué de deux tableaux : le premier est la définition en énergie du spectre tel que chaque élément $E(i)$ du tableau a comme valeur la borne inférieure de ce groupe d'énergie i . Le deuxième tableau est tel que chaque élément $I(i)$ a comme valeur le nombre de particules comprises dans la gamme d'énergie $[E(i); E(i+1)[$.

L'utilisation de ces classes avec les classes existantes de MURE permet la définition du spectre de particules souhaité d'un échantillon qui peut être par la suite écrit de façon automatique en langage MCNP. Les classes mises en synergie avec *Spectrum* sont *MCNPSource* (Ecriture en langage MCNP de source défini dans MURE) et *Material* (définition d'un échantillon : Z,A,I, proportion de chaque isotope présent). Le schéma représente l'organisation de ces classes entre elles.

5.6. INTÉGRATION DANS MURE : LE MODULE CHARS

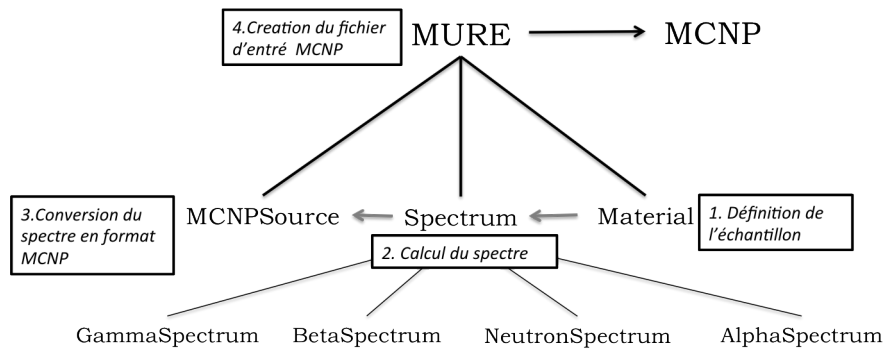


FIGURE 5.20 – CHARS dans MURE

Ces outils permettent également d'étudier l'influence du vieillissement de la matière radioactive sur l'émission des rayonnements et par conséquent sur des grandeurs telles que la dose. Pour ce faire l'utilisateur définit son échantillon au temps 0, et les temps auxquels il souhaite réaliser ses calculs. Puis, pour chacun de ces pas, un calcul MCNP est lancé. Le terme source à chaque pas est calculé à l'aide des inventaires en noyaux qui évoluent au cours du temps. Ces inventaires sont calculés à partir du nombre de noyaux au temps 0 par inversion de la matrice de Bateman. Le lecteur, utilisateur de MURE, pourra trouver en annexe B un fichier d'input MURE de création de source qui utilise ces méthodes.

5.6.1 Intégration dans l'interface graphique MureGui

L'interface MureGui est l'outil permettant d'exploiter les résultats issus d'un calcul d'évolution MURE. Il donne accès à l'évolution des inventaires, des sections efficaces moyennes, des flux moyens, des taux de réaction, du k_{eff} ainsi que du taux de régénération au cours de l'irradiation. L'onglet *radiotoxicity* de MureGui permet de calculer l'activité, la chaleur résiduelle, la radio-toxicité et les inventaires en noyaux au cours du refroidissement et après une éventuelle séparation chimique intervenant à une date fixée par l'utilisateur. La figure 5.21 représente l'onglet radiotoxicity de MureGui.

5.6. INTÉGRATION DANS MURE : LE MODULE CHARS

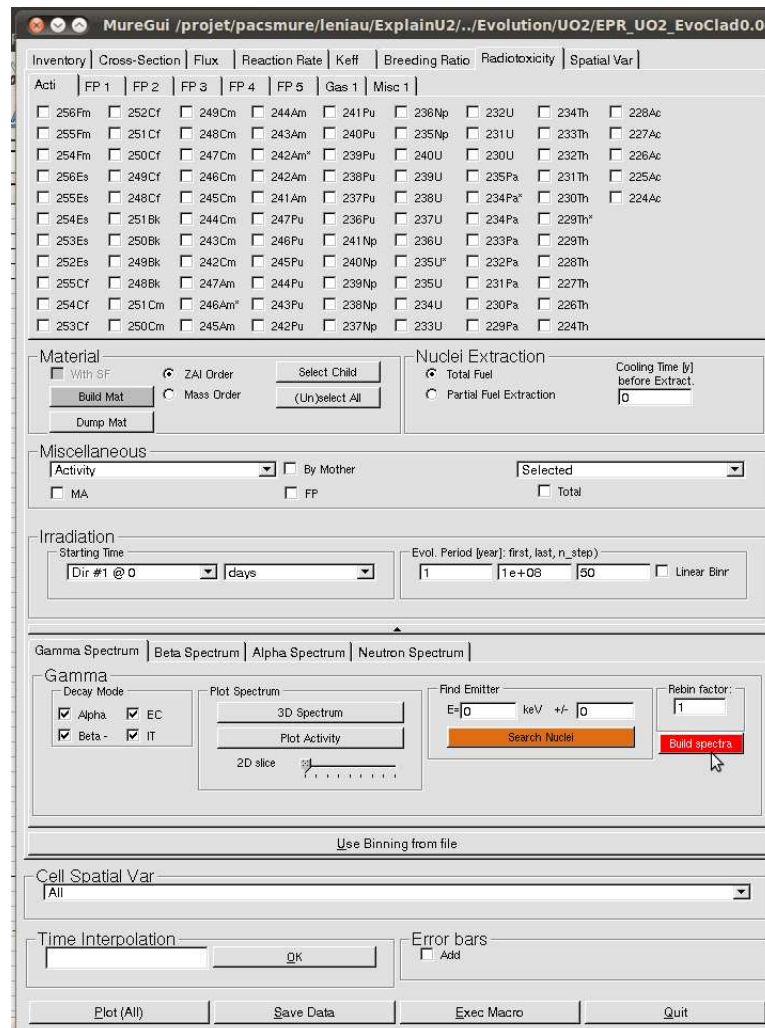


FIGURE 5.21 – L'onglet Radio-toxicité de MureGui

Cet onglet a été mis à jour afin de rendre accessible le calcul des termes sources de façon conviviale. Il est possible de tracer le spectre (alpha, beta, gama ou neutron) d'un matériau évoluant issu d'un calcul MURE tout comme celui d'un échantillon défini par l'utilisateur. Ci dessous sont listées les fonctionnalités.

Plot Spectrum :

Possibilité de tracer le spectre au cours du temps sous forme d'un histogramme en 3D ou bien de tracer le spectre à une date fixé. En sélectionnant le ou les noyaux souhaités, le programme trace à l'aide de couleurs les spectres correspondant à chaque noyaux sur le même graphique. Ces spectres peuvent être sauvegardés en format texte ou bien en un fichier définissant, en langage

5.6. INTÉGRATION DANS MURE : LE MODULE CHARS

MURE, le terme source pour un éventuel calcul subséquent.

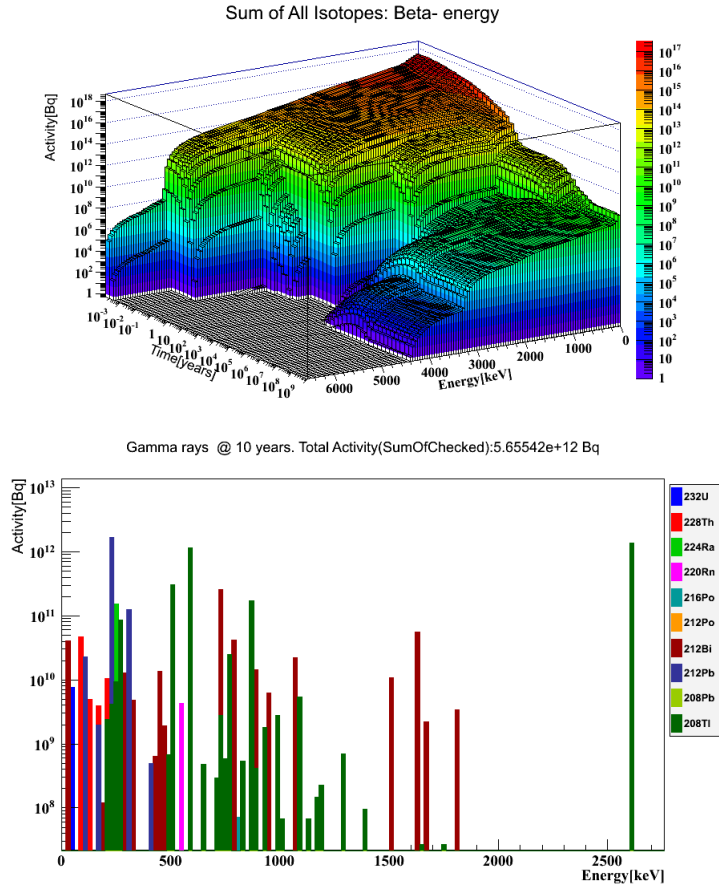


FIGURE 5.22 – Spectres β^- au cours du temps d'un combustible utilisé UOx (haut) et spectre gamma de l'uranium 232 et de ses descendants (bas)

– Plot Activity

Permet de tracer l'activité gamma, beta, neutron, ou alpha au cours du temps pour les noyaux ou groupes de noyaux sélectionnés (produits de fissions, actinides mineurs, et total). La figure 5.23 représente l'activité alpha au cours du temps d'un combustible UOx utilisé irradié en REP pendant 55GWj/t.

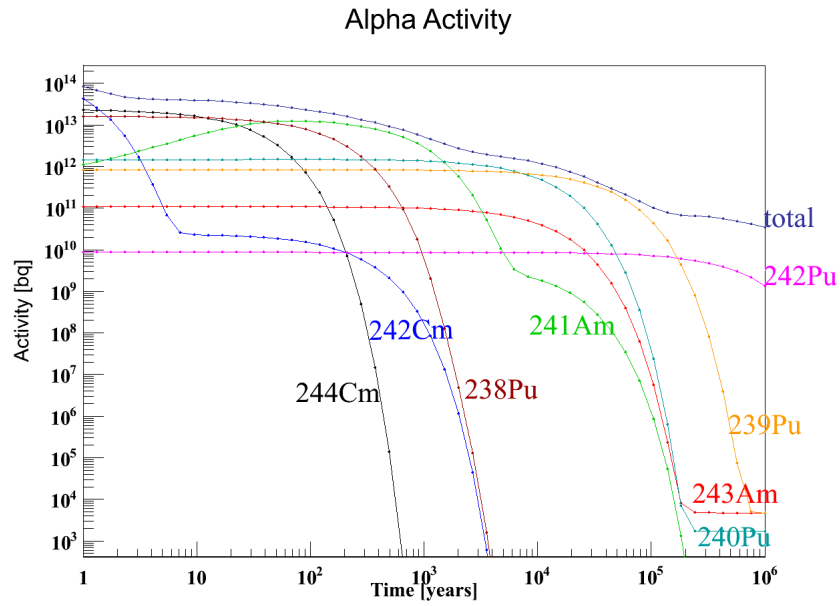


FIGURE 5.23 – Activité alpha d'un combustible utilisé au cours du temps

– Find Emitter

Cette fonction affiche les émetteurs participant au spectre dans une gamme d'énergie donnée. Est indiqué le nom du noyau, l'énergie de la raie, et son intensité en % du total émis dans la gamme d'énergie considérée. La figure 5.24 référence les principaux émetteurs γ d'un combustible UOx et ThU irradié en REP pendant 55 GWj/t et refroidi 5 ans.

5.6. INTÉGRATION DANS MURE : LE MODULE CHARS

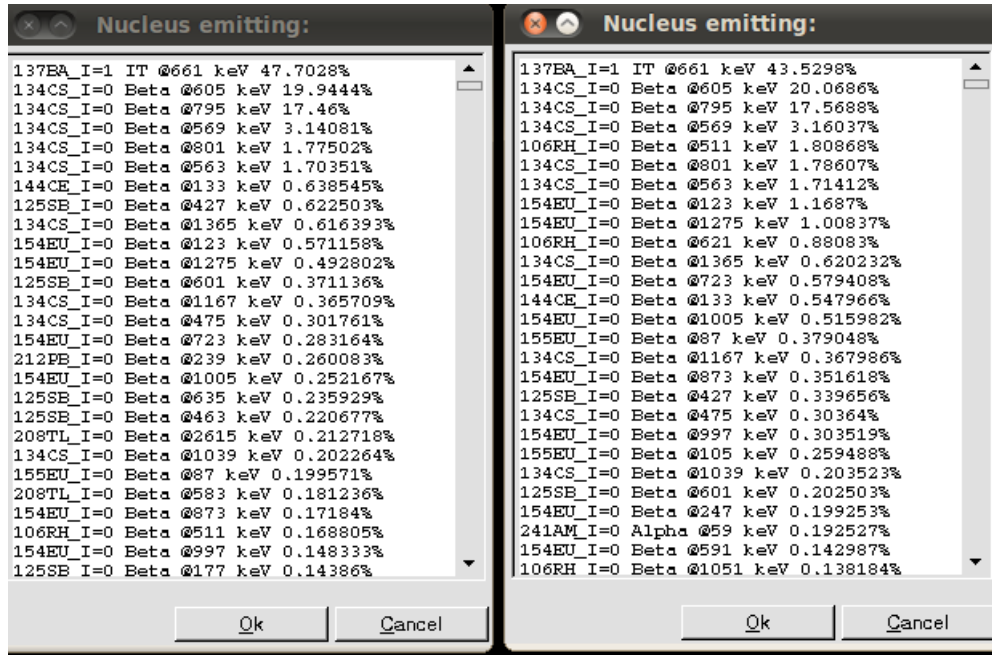


FIGURE 5.24 – Principaux émetteurs gamma d'un combustible UOx (droite) et ThU (gauche)

- Use Binning from file

La définition énergétique des spectres, est donnée par défaut, mais peut être donnée par l'utilisateur à travers un fichier contenant le nombre de groupes ainsi que l'énergie inférieure de chaque groupe.

Conclusion

Ce qu'il faut retenir :

- CHARS pour **CH**Aractionization of **R**adioactives **S**ources est un ensemble d'outils validés permettant :
 - Le calcul des spectres γ issues des décroissances : α , β , capture électronique et des transitions isomériques.
 - Le calcul des spectres β^- , offrant la possibilité de prendre en compte, à l'aide de MCNP, le rayonnement de freinage.
 - Le calcul des spectres α .
 - Le calcul des spectres neutrons provenant des fissions spontanés et des réactions (α, n) sur l' ^{18}O et l' ^{17}O .
- Couplé à MURE, CHARS offre la possibilité :
 - D'extraire les différentes sources de rayonnements (spectres et activités) de la matière irradiée de façon conviviale par l'intermédiaire de l'interface graphique de MURE.
 - De calculer et d'écrire, de façon automatique, la définition énergétique des particules sources en format MCNP, selon les matériaux définis par l'utilisateur.
 - De faire évoluer les matériaux et les termes sources en fonction du temps permettant de calculer l'évolution de grandeurs (*e.g* débit de dose) au cours de la décroissance de la matière radioactive.

Chapitre 6

Applications au cycle du thorium

Ce chapitre vise, par l'intermédiaire de calculs simples de radioprotection , à estimer l'impact de l'introduction du thorium sur quelques points de l'aval du cycle du combustible. À l'aide des outils de calculs de termes sources décrits dans le chapitre 5 et de MCNP, une série de calculs de doses a été effectuée. La méthodologie employée consiste à substituer des matières thoriées à celles du cycle français actuel et de comparer les débits de doses.

6.1 Transport du combustible utilisé

Une fois le combustible déchargé du coeur, il est entreposé dans la piscine de désactivation afin que sa chaleur résiduelle et son activité décroissent suffisamment pour permettre son transport vers l'usine de retraitement (cf. 1.2.2.1 chapitre 1). Ces deux paramètres (chaleur et activité) dépendent de la composition du combustible irradié (surtout des produits de fissions). Cette composition dépend du taux de combustion, du type de combustible, et du temps. Le combustible UO_2 utilisé séjourne entre un à deux ans en piscine avant d'être évacué vers les piscines de La Hague. Du fait de l'allongement des taux de combustion et de l'augmentation de l'enrichissement, les combustibles doivent séjourner de plus en plus longtemps en piscine, ce qui a pour conséquence d'augmenter le taux d'occupation de ces dernières. Ceci amène certains exploitants à augmenter la quantité de combustible stockée sur la même surface par une méthode dite de *reracking*. Cette méthode consiste à ajouter des absorbants neutroniques dans les paniers de stockage (*rack*).

Le temps de latence entre le déchargement et l'évacuation du combustible usé est un enjeu économique non négligeable (constructions ou non de piscines supplémentaires, mise en place du *reracking*, perte de matière valorisable par décroissance du noyau fissile ^{241}Pu ...). **L'étude réalisée ici consiste à entrevoir l'impact de l'utilisation de combustibles thoriés sur le temps de stockage du combustible irradié en piscine de désactivation du réacteur.**

Pour ce faire, cette étude se base sur la limite en chaleur résiduelle de 63.25 kW du château de transport de combustible usé le plus communément employé en France à savoir le TN12/2 (Areva TN) [For11]. D'autre part, la législation impose un seuil en débit de dose à la surface du château de 2mSv.hr^{-1} [HAR13]. Quatre combustibles usés différents sont comparés : le combustible de référence UO_2 , le MOX $((\text{U}, \text{Pu})\text{O}_2)$, le $(\text{Th}, ^{233}\text{U})\text{O}_2$ et le $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ tous irradiés pendant 55GWj/tMLi en REP. Les compositions isotopiques de ces combustibles sont données (avant irradiation) au chapitre 3.

6.1.1 Chaleur Résiduelle

La chaleur résiduelle au cours du refroidissement est calculée à l'aide de MureGui (cf. chapitre 5). Ce calcul est réalisé à partir des inventaires des différents noyaux au cours du temps et des données des *Heat factor* (en W/Bq calculé à partir des Q_{value} des décroissances). La figure 6.1 montre l'évolution de la puissance résiduelle pour 12 assemblages de chaque combustible, tous irradiés à 55GWj/tMLi , la limite de 63.25 kW est également indiquée.

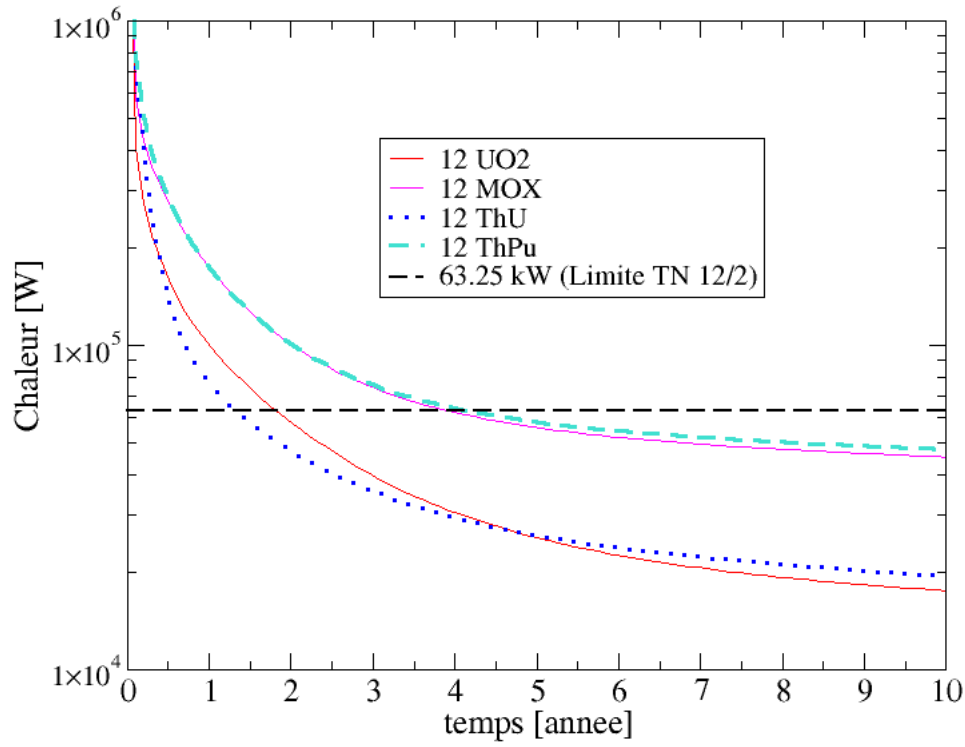


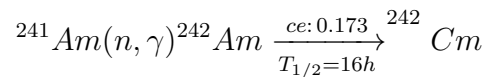
FIGURE 6.1 – Comparaison des chaleurs résiduelles des quatre combustibles irradiés

Il est intéressant de remarquer que la chaleur résiduelle des 12 assemblages d'($Th,^{233}U$)O₂ est inférieure, sur une période allant de 0.4 ans à 4.5 ans, à celle de l'UO₂. De plus, la courbe du ($Th,^{233}U$)O₂ passe sous le seuil aux alentours de 1.3 ans contre 1.8 ans pour l'UO₂. Pour le combustible ($Th,^{233}U$)O₂, la contribution du ^{233}Pa à la chaleur résiduelle est comparable à celle des produits de fissions sur une période allant d'environ une semaine à 2 mois après déchargement. C'est pourquoi, cet isotope étant absent du combustible UO₂, la chaleur résiduelle du ($Th,^{233}U$)O₂ est supérieure à celle de l'UO₂ jusqu'à environ 5 mois. Le fait que la courbe du ($Th,^{233}U$)O₂ passe en dessous de celle de l'UO₂ puis qu'elle la recoupe aux alentours de 4.5 ans provient des différences entre les rendements de fission de l' ^{235}U et de l' ^{233}U . Tout d'abord, le ^{106}Rh (décroissance du ^{106}Ru $T_{1/2} = 374j$), qui participe de façon assez significative à la chaleur résiduelle dans le cas du combustible UO₂ (cf. figure 6.2) est 1.6 fois moins produit par fission de l' ^{233}U que par fission de l' ^{235}U et 17 fois moins par fission du ^{239}Pu (or environ un tiers des fissions provient du ^{239}Pu en fin d'irradiation de l'UO₂). Ensuite, l' ^{90}Y (décroissance du ^{90}Sr , $T_{1/2} = 29a$), qui

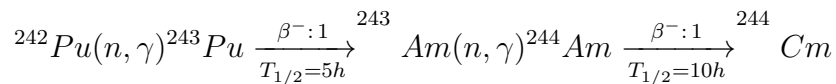
6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ

représente une part importante de la chaleur résiduelle après 3.5 ans (cf. figure 6.2) est, par contre, 20 % plus produit par fission de l' ^{233}U que de l' ^{235}U et 3.2 fois plus comparé à la fission du ^{239}Pu . Pour résumer, le fait que la courbe de $(\text{Th}, ^{233}\text{U})\text{O}_2$ passe en dessous de celle de l' UO_2 provient de la disparition du ^{233}Pa et d'une moindre production de ^{106}Rh . Les courbes se recroisent à 4.5 ans en raison d'une plus grande production ^{90}Y en $(\text{Th}, ^{233}\text{U})\text{O}_2$.

Les combustibles au plutonium ont une chaleur résiduelle plus élevée que les deux autres sur la période de temps étudiée. Principalement trois actinides en sont la cause : le ^{242}Cm ($T_{1/2} = 163\text{j}$), le ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18\text{ans}$) et le ^{238}Pu ($T_{1/2} = 88\text{ans}$) (cf. figure 6.3). Le ^{242}Cm est en grande partie produit par la réaction :

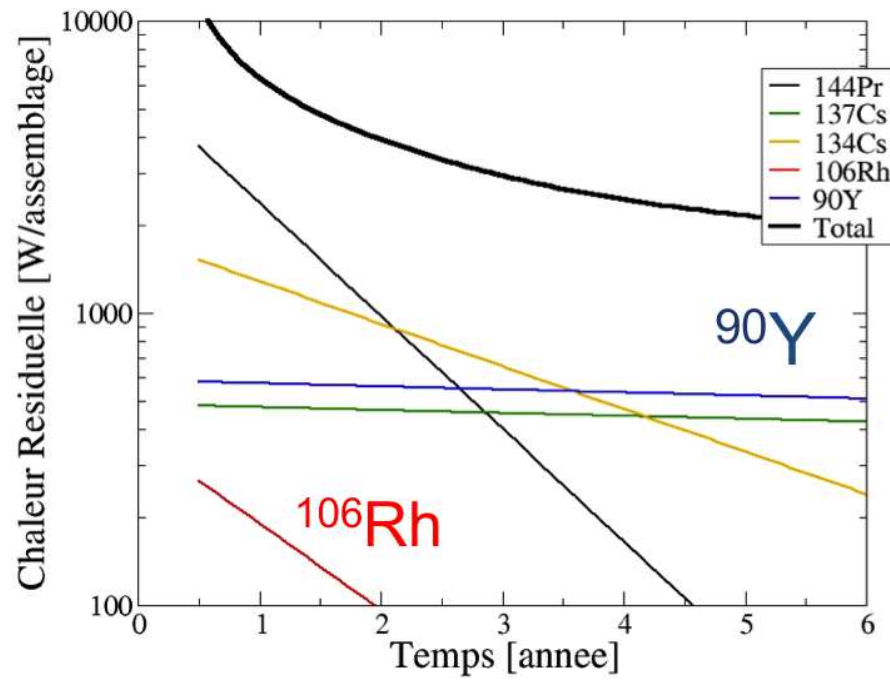


, et le ^{244}Cm par

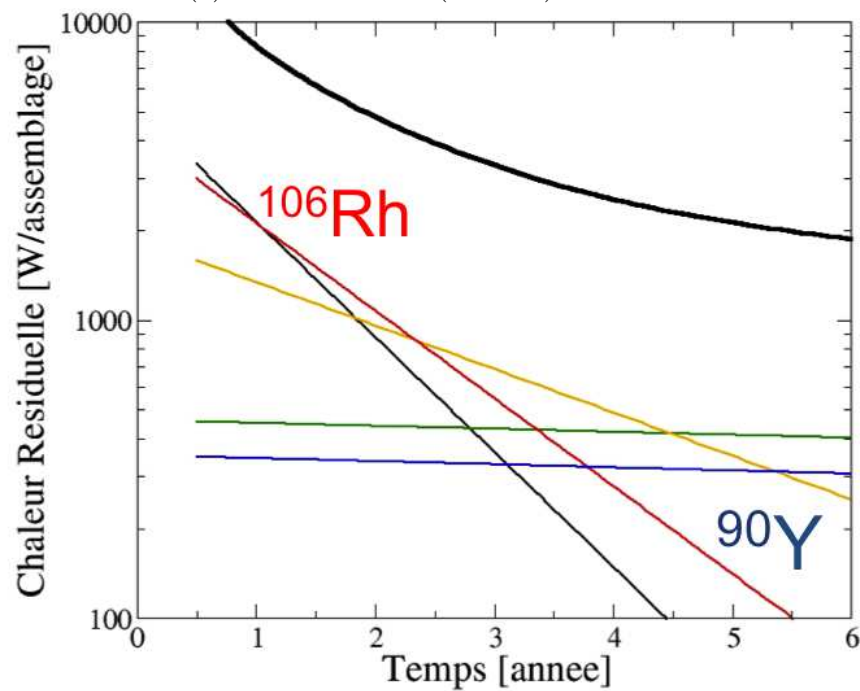


Le ^{238}Pu , initialement dans les combustibles au plutonium, est légèrement détruit pendant l'irradiation, sa synthèse provient de la réaction $^{239}\text{Pu}(n, 2n)$. Les précurseurs de ces trois actinides étant beaucoup plus présents en combustible au plutonium, leur synthèse est plus importantes, la chaleur résiduelle est, par conséquent, plus grande en combustible au plutonium.

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ



(a) du combustible $(Th^{233}U)O_2$ irradié



(b) du combustible UO_2 irradié

FIGURE 6.2 – Principaux contributeurs à la chaleur résiduelle

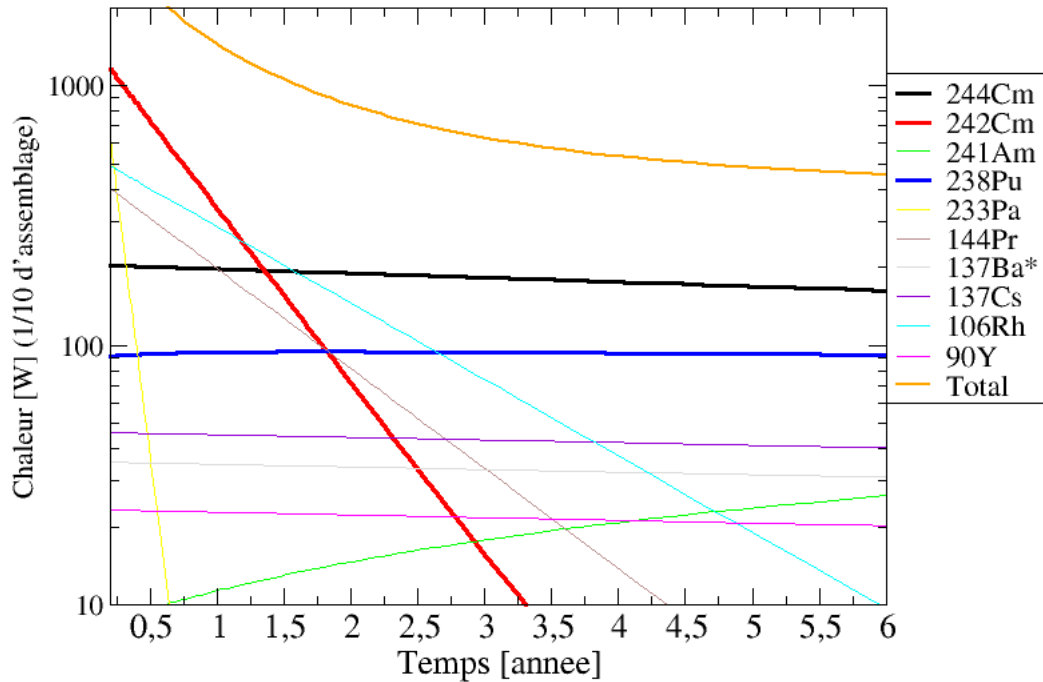


FIGURE 6.3 – Principaux contributeurs à la chaleur résiduelle du combustible $(Th, Pu)O_2$ irradié

En conclusion, du point de vue de la chaleur résiduelle, le combustible $(Th, {}^{233}U)O_2$ est avantageux puisque la chaleur résiduelle qu'il dégage est inférieure au seuil pour le transport 6 mois avant l' UO_2 . En revanche, le combustible $(Th, Pu)O_2$ n'offre pas d'avantage comparativement au combustible MOX $(U, Pu)O_2$, la chaleur résiduelle est même légèrement plus élevée (la teneur en plutonium du $(Th, Pu)O_2$ doit être légèrement plus grande pour atteindre le même taux de combustion).

6.1.2 Débit de Dose

Dans ce qui suit les débits de dose à la surface du château de transport sont présentés pour les quatre combustibles ayant refroidis pendant des temps différents après déchargement.

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ

6.1.2.1 Modélisation

La géométrie simulée se base sur deux documents :

- Un benchmark de la NEA de 1992 appliqué au TN12 [Loc92] dont les données géométriques ne sont que parcellaires. En effet, seuls les schémas des ailettes et des capots anti-chocs y sont présents. Les compositions des différents matériaux constituant le château sont, par contre, bien définies.
- Un fascicule de cours : *Techniques de l'ingénieur* relatif au transport des matières radioactives [HAR13] dans lequel quelques données géométriques sont renseignées pour le TN12/2.

Le TN12/2 est constitué d'une virole (ou corps) en acier de 30 cm d'épaisseur sur lequel sont fixées environ 65 000 ailettes en cuivre qui permettent l'évacuation de la chaleur. Entre ces ailettes est disposée une résine neutrophage d'une épaisseur de 13.5 cm. À l'intérieur de la virole se situe le panier amovible comportant douze logements, chacun recevant un assemblage de combustible usé. Les parois du panier sont en aluminium boré. Aux extrémités du chateau, des capots anti-choc en chêne et en balsa sont équipés (cf. figure 6.4).

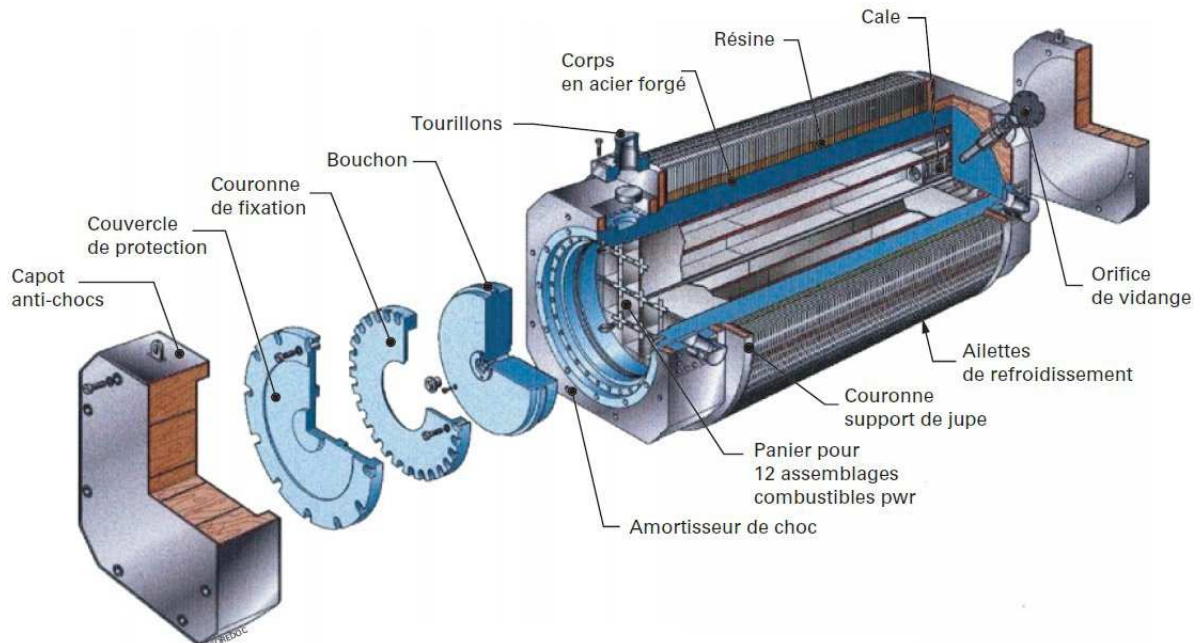


FIGURE 6.4 – Éclaté de l'emballage TN12/2

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ

La modélisation des 65 000 ailettes étant très laborieuse, celles-ci sont homogénéisées avec l'air environnant selon [Loc92]. De plus, la relative complexité géométrique des extrémités ainsi que le temps de calcul conséquent du transport des particules dans la géométrie complète ont amené à une modélisation plus simple. Le colis est simulé comme un quart de colis infini. Plus précisément un quart du colis (contenant donc trois assemblages) est simulé sur 10 cm de long et sur chaque surface externe sont appliquées des conditions de réflexions (à l'exception de la surface en contact avec l'extérieur). De plus, les 3x264 crayons combustibles ne sont pas simulés individuellement mais homogénéisés avec le "vide" l'entourant. C'est à dire que le combustible et les gaines sont dilués dans l'emplacement prévu de l'assemblage (cf. figure 6.5). Toute ces approximations ne permettent pas de donner avec précision les débits de doses en tel ou tel point de la surface du colis. Cette modélisation permet néanmoins de comparer de manière relative les débits de doses engendrés par les quatre différents combustibles usés étudiés. La géométrie a été sectionnée en N cellules afin de réduire la variance par l'importance en 2^N . C'est à dire qu'à chaque fois qu'une particule traverse la surface d'une cellule plus externe, 2^N particules sont créées (où N est le nombre de cellules comptés depuis la couronne la plus interne), il est alors attribué à ces particules un poids de $\frac{1}{2^N}$ afin de conserver le (vrai) nombre de particules ayant effectivement traversé la surface.

Le flux de particules est enregistré à la surface du colis et converti en débit de dose efficace par l'intermédiaire des coefficients de conversion antéro-postérieur de la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) [PHBE⁺10]. Ces coefficients sont calculés à partir de différents codes Monte-Carlo simulant une géométrie de corps humain très détaillée. Pour un type de particule (γ , neutrons, électrons ...) à une énergie donnée, selon une géométrie d'irradiation définie¹, la dose absorbée D_T , pour chaque organe T , est calculée. Par l'intermédiaire des coefficients de pondérations de chaque organe W_T (certains sont plus radio-sensibles que d'autres) et des coefficients de pondérations du type de radiation W_R est calculé la dose efficace E_R , reçu par le corps entier, pour une énergie d'un type de particule :

$$E_R = \sum_T W_T D_{T,R} W_R$$

E_R normalisé par unité de flux incident sur le corps entier est le coefficient de conversion du flux vers le débit de dose efficace, pour un type de radiation à une énergie

1. Ici le flux de particules est homogène et unidirectionnel selon l'axe antéro-postérieur du modèle de corps humain

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ

donnée. Ces coefficients sont tabulés dans la référence [PHBE⁺10] pour différents types de radiation à différentes énergies et pour plusieurs géométries d'irradiation.

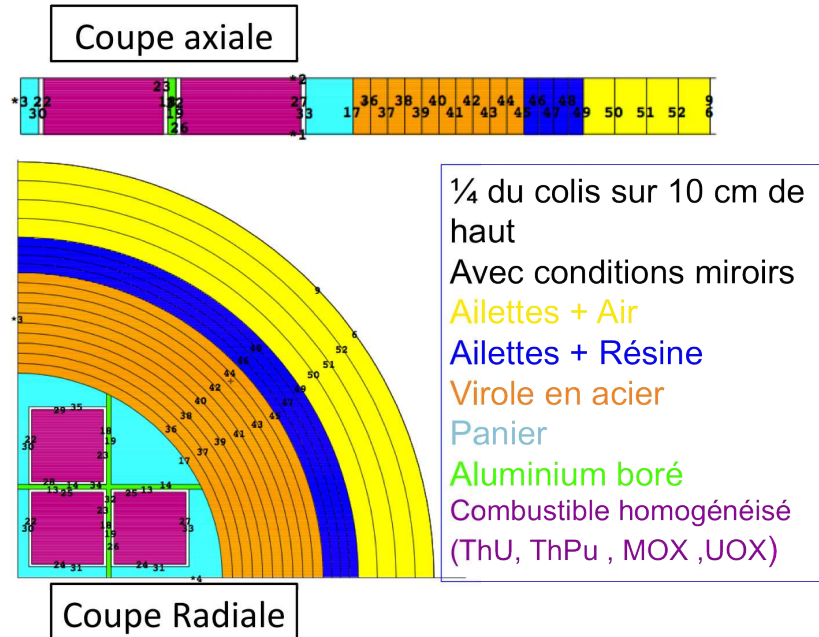


FIGURE 6.5 – Géométrie simulée avec MCNP

6.1.2.2 Termes sources et particules transportées

Les termes sources pris en compte sont les γ de décroissances et les neutrons provenant des fissions spontanées et des réactions (α, n) . Pour chaque pas de temps, la composition du combustible, ainsi que les spectres γ et neutrons sont remis à jour. Le transport couplé neutron-gamma est possible avec MCNP, par conséquent les γ secondaires induits par les réactions nucléaires peuvent être calculés. Les spectres énergétiques, les distributions angulaires, les multiplicités, ainsi que les sections efficaces de production de γ sont enregistrés dans les bases de données évaluées² (JEFF, ENDF etc ...) pour certains noyaux et certaines réactions (pour plus de détails se référer au manuel du formatage endf6 [THB11]). Ces données ne sont pas exhaustives et ne couvrent pas l'intégralité des noyaux et/ou réactions. MCNP ne prend en compte, bien évidemment, que les gammas issus de réactions dont les données sont présentes. Ainsi, il est assez difficile de dire précisément quels sont les γ secondaires pris en compte sans un passage en revue laborieux des différentes bases de données.

2. MF=12,13,14 et 15 pour les habitués du format endf6

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ

En utilisant le site de NNDC [Lab13] qui compile toutes ces données pour un grand nombre de bases il semblerait que les données sur les γ issues des réactions (n, γ) (n, f) (n, n') soient présents pour les principaux isotopes du plutonium de l'uranium et du thorium. Il serait d'ailleurs plus judicieux d'utiliser la base ENDF qui paraît plus exhaustive (par exemple il n'y pas de données pour le ^{239}Pu dans la base JEFF). Les données sur les γ de captures radiatives pour le fer et cuivre sont également présentes.

L'activation des éléments de structures (grilles et embouts) n'a pas été prise en compte dans le calcul d'évolution MURE, par conséquent le ^{60}Co synthétisé par la réaction $^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ est absent lors du calcul des termes sources γ (γ de 1.1 MeV et 1.3 MeV). Cependant il semble être raisonnable de faire l'hypothèse que le nombre de noyaux de ^{59}Co , la section efficace moyenne $^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ et le flux soient très proches pour les quatre combustibles si bien que l'impact du ^{60}Co soit quasiment identique sur le débit de dose γ pour les quatre cas examinés comparativement.

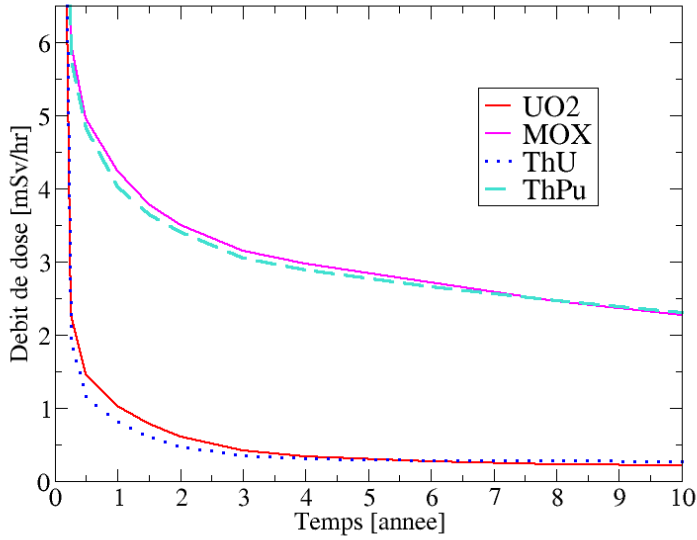
Pour chaque calcul les termes sources γ et neutron sont calculés par CHARS (cf. chapitre 5) selon la composition du combustible pour un temps donné après déchargement. Les origines spatiales des sources γ et neutron sont tirées aléatoirement de façon homogène dans les trois assemblages définis en violet dans la figure 6.5.

6.1.2.3 Résultats

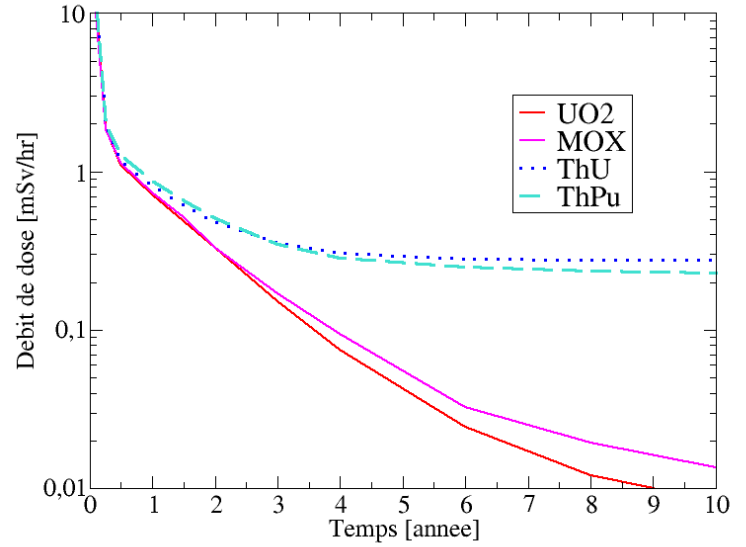
Les résultats des débits de doses à la surface du colis sont présentés dans la figure 6.6 pour les quatre cas et pour un temps variable de refroidissement.

Les débits de doses pour les combustibles au plutonium sont bien supérieurs. En cause : leur forte activité neutron (cf. figure 6.6c). Activité dû principalement au ^{244}Cm au ^{242}Cm et dans une moindre mesure à l' $^{242}\text{Am}^*$, ^{246}Cm et ^{238}Pu (cf. figure 6.7).

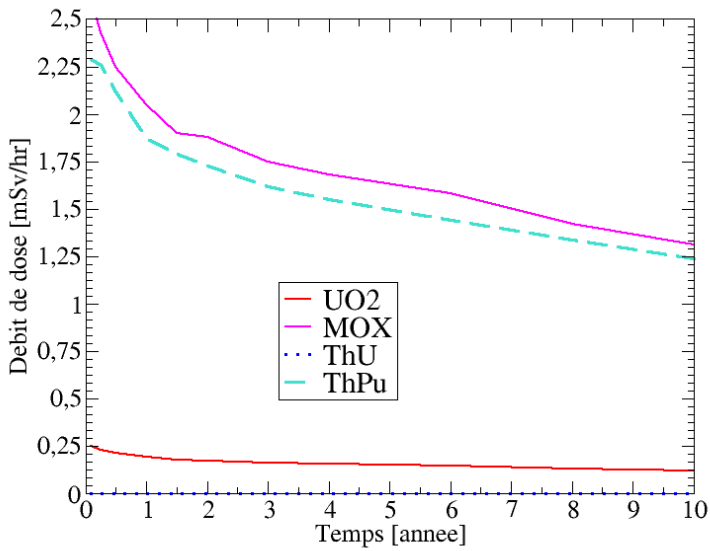
6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ



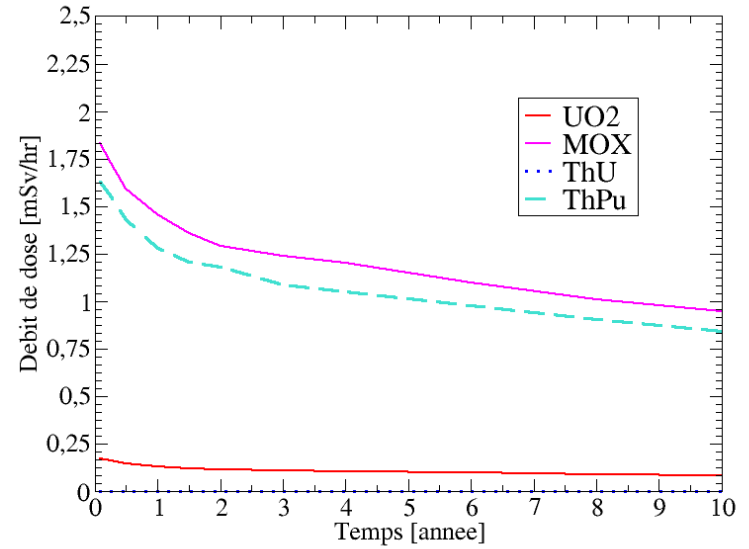
(a) Débit de dose total



(b) Débit de dose γ



(c) Débit de dose neutron



(d) Débit de dose des γ secondaires
issus des réactions nucléaires

FIGURE 6.6 – Débits de doses à la surface du château

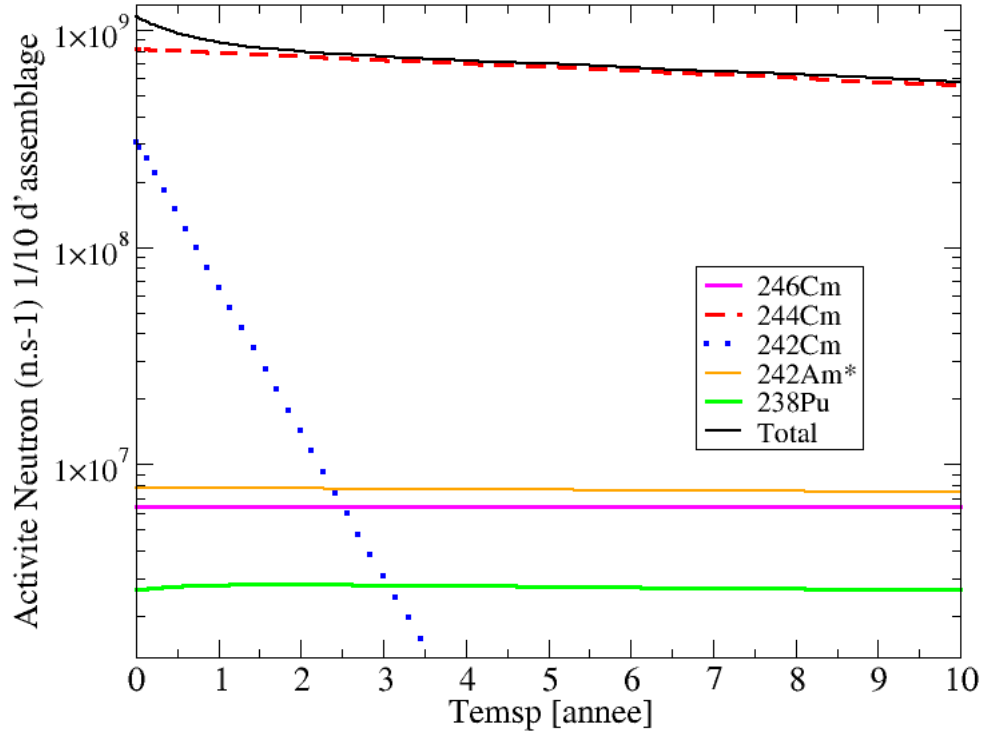
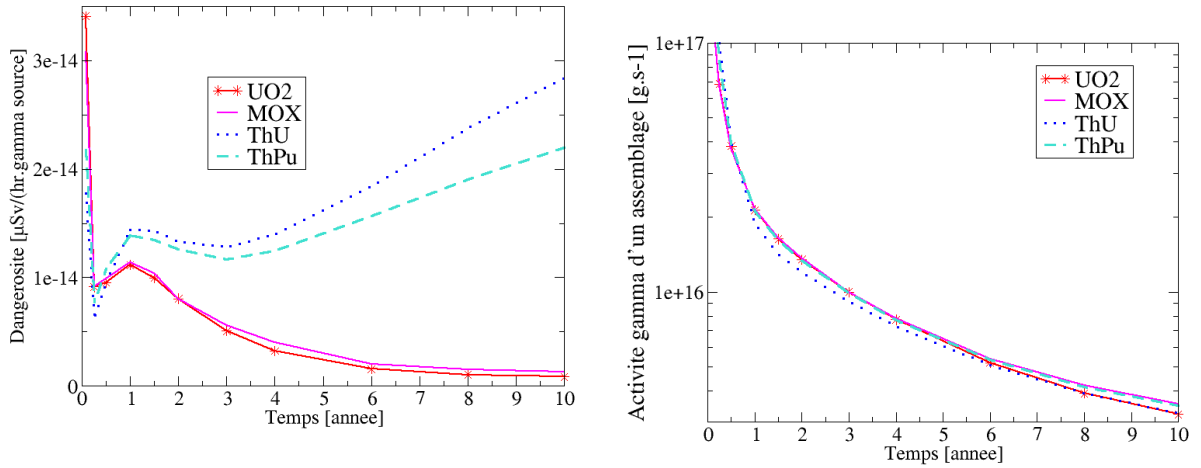


FIGURE 6.7 – Principaux contributeurs à l’activité neutron d’un combustible $(Th, Pu)O_2$ irradié

Le débit de dose pour le combustible $(Th, U)O_2$ est inférieur à celui du combustible UO_2 sur une période allant d’environ 6 mois à 6 ans (cf. figure 6.6a). Ceci est dû à une production quasi nulle des actinides Cm , Pu et Am entraînant une dose neutron très faible ($1 \mu Sv.hr^{-1}$). Pour le $(Th, U)O_2$ les neutrons proviennent des réactions (α, n) de l’ ^{232}U et de ses descendants. En revanche la dose *gamma* ne décroît que très peu entre 4 et 10 ans (cf. figure 6.6b) pour le $(Th, U)O_2$, si bien que la dose devient légèrement plus grande après 6 ans de refroidissement (cf. figure 6.6a). La cause de ce phénomène est dû à l’incontournable ^{232}U . En effet comme l’atteste la figure 6.8, le débit de dose normalisé par particules sources (noté, ici, dangerosité des γ), augmente avec le temps pour les combustibles thoriés, si bien que le produit ”*Activite gamma . Dangerosite (= debit de dose γ)*” ne décroît que très lentement. Cette remontée de la dangerosité entre 3 et 10 ans est dû à la ”poussée” de la raie à 2.6 MeV du ^{208}Tl (descendant de l’ ^{232}U) dans le spectre γ . Plus la proportion de γ énergétiques dans le spectre est grande plus la dangerosité est élevée.

6.1. TRANSPORT DU COMBUSTIBLE USÉ



(a) Dangersités des γ (ie débit de dose par particule source)

(b) Activités γ des combustibles usés

FIGURE 6.8

Le débit de dose pour le combustible ThPu est inférieur à celui du MOX sur une période allant de 6 mois à 7 ans (cf. figure 6.6a). L'effet provient d'une dose neutron et de gammas secondaires plus faibles (cf. figure 6.6c et 6.6d). Or, le spectre et l'activité neutron sont très voisins pour ces deux combustibles (production équivalente de ^{242}Cm et ^{244}Cm). La seule explication tient donc aux différences dans les compositions de ces deux combustibles. Ces différences de compositions devraient entraîner une différence notable dans la valeur du facteur de multiplication effectif (k_{eff}) du colis entre ces deux combustibles. Le k_{eff} du colis chargé en $(U, Pu)\text{O}_2$ devrait donc être plus important que celui du colis chargé en $(Th, Pu)\text{O}_2$. Le spectre neutronique n'est plus du tout thermique dans le combustible, le transport se fait à sec, donc il n'y a pas de modérateur. Pour un spectre rapide, les fissions rapides sur le noyau fertile ne sont pas négligeables, or le seuil de fission est plus élevé pour le ^{232}Th que pour l' ^{238}U . De plus les valeurs de η^3 sont plus importantes, en spectre rapide, pour le ^{239}Pu que pour l' ^{233}U , or le combustible $(U, Pu)\text{O}_2$ régénère en partie le ^{239}Pu , qui est donc plus présent pour ce dernier à la fin de l'irradiation. D'où un k_{eff} plus important pour un colis chargé en combustible $(U, Pu)\text{O}_2$ que $(Th, Pu)\text{O}_2$.

Afin de vérifier cette assertion un calcul en KCODE est réalisé avec MCNP pour ces deux combustibles dans la même géométrie. On obtient ainsi un k de 0.34 pour le $(U, Pu)\text{O}_2$ contre 0.26 pour le $(Th, Pu)\text{O}_2$ à 2 ans de refroidissement. C'est donc

3. η : facteur de reproduction : nombre de neutrons émis par neutron absorbé par le noyau fissile

le facteur de multiplication plus grand en $(U, Pu)O_2$ qui explique la dose neutron et de gamma secondaires plus importante pour ce combustible.

Le fait que le débit de dose devienne plus important pour le $(Th, Pu)O_2$ aux alentours de 7 ans est dû à la dose γ , infligée notamment par la présence de l' ^{232}U .

6.1.3 Conclusion

Le combustible $(Th, U)O_2$ irradié présente un avantage pour le transport par rapport au combustible UO_2 . La chaleur résiduelle ainsi que la dose à la surface du château sont plus faibles. Le bénéfice sur la chaleur résiduelle provient d'une production beaucoup plus faible de ^{106}Rh . Celui sur le débit de dose est la conséquence d'une production quasi inexistante de ^{244}Cm et de ^{242}Cm .

Pour les combustibles au plutonium, l'utilisation du thorium comme élément fertile, n'apporte pas d'avantage significatif sur la chaleur résiduelle. Elles sont assez voisines, voir plus élevées, pour le $(Th, Pu)O_2$. Cependant il existe un léger avantage pour le combustible $(Th, Pu)O_2$ au niveau du débit de dose. Ceci étant dû à un facteur de multiplication effectif du colis plus faible dans le cas du $(Th, Pu)O_2$.

En conclusion c'est surtout l'utilisation du plutonium comme combustible qui est pénalisant pour le transport des combustibles irradiés.

Ainsi, il semble raisonnable d'utiliser les châteaux de transports disponibles à l'heure actuelle pour le transport des combustibles thoriés irradiés.

N.B Le temps de séjour du combustible dépend fortement des capacités en termes de réduction de dose et d'évacuation de la chaleur du château de transport. Par exemple le MOX usé doit rester jusqu'à plus de 10 ans en piscine dans le cas de l'utilisation du TN12 [CO09] contre seulement 2.5 ans avec le TN112. Ceci grâce à un blindage neutronique plus important [For11] et à une double enceinte (2 viroles).

6.2 Thorium de retraitement

Au cours du refroidissement des combustibles thoriés une partie de l'uranium 232 synthétisé en coeur passe dans le vecteur thorium ($^{232}U \xrightarrow[68.9a]{\alpha} ^{228}Th$), le thorium issu du retraitement (ThRT) aura donc une activité de gamma de haute énergie (notamment 2.6 MeV du ^{208}Tl) non négligeable, il convient donc de stocker cette matière fertile valorisable un certain temps avant d'envisager son utilisation dans un nouveau combustible. L'inventaire en ^{228}Th croît avec le temps jusqu'à être à

6.2. THORIUM DE RETRAITEMENT

l'équilibre avec son père l'uranium 232 (10 ans), puis décroît au même rythme que ce dernier. Pour limiter la proportion de ^{228}Th dans le vecteur thorium il faut donc retraiter le combustible le plus tôt possible, cependant les contraintes de chaleur résiduelle et d'activité liées au transport des combustibles usés imposent un temps de latence incompressible entre la fin de l'irradiation et la séparation chimique. **On se propose ici d'estimer le temps nécessaire pour que la dose reçue à 1 m d'une sphère de 1kg de dioxyde de ThRT soit égale à celle d'une sphere de dioxyde de thorium naturel.** Le thorium naturel est supposé à l'équilibre avec ses descendants et noté Thorium naturel, equ. On se placera dans le cas le plus défavorable, où le combustible est retraité au bout de 10 ans (inventaire en ^{228}Th maximum) et le cas où il est retraité au bout de 1 an. Le calcul a été réalisé pour du combustible ThPu irradié à 55GWj/t dans un REP. La courbe (6.9) présente les résultats obtenus.

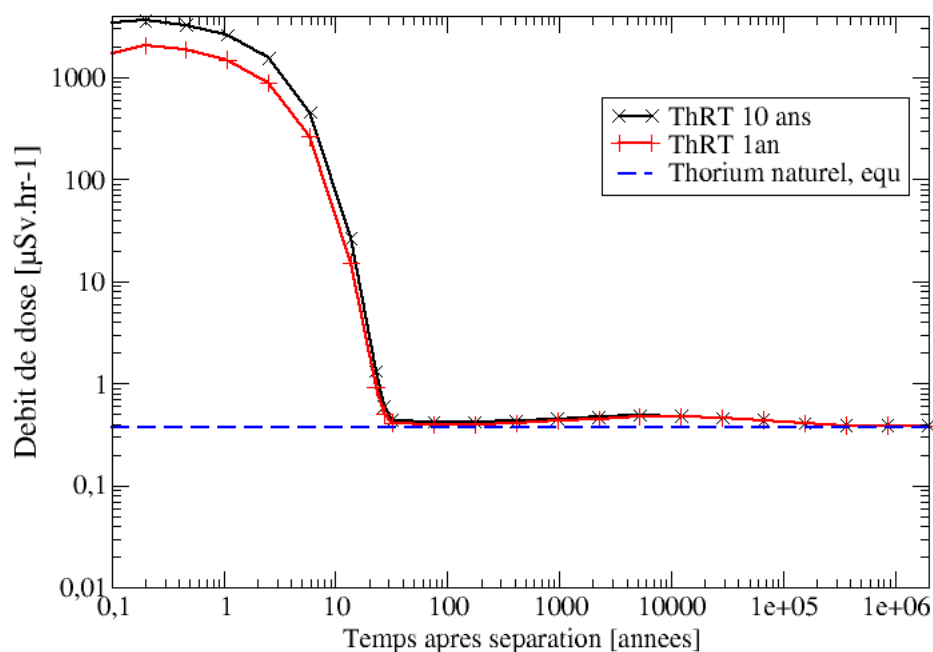


FIGURE 6.9 – Débit de dose : Thorium de Retraitement VS Thorium naturel

Deux informations sont à retenir de la figure 6.9 tout d'abord le débit de dose à

1m d'une sphère de 1 kg de $ThRTO_2$ atteint une valeur supérieur au $mSv.h^{-1}$ lors des deux premières années après séparation et **il faut attendre environ trente ans pour retrouver un débit de dose du même ordre** (bien que légèrement plus élevé) que celui du thorium naturel. Deuxièmement le temps de trente ans pour atteindre le même débit de dose que le thorium naturel dépend très peu du temps avant séparation (ou de la quantité de ^{228}Th à $T_{Separation}$) puisque au bout de 30 ans le ^{228}Th a quasiment disparu.

La légère remontée de la dose entre 1000 et 10^5 ans provient de l'apparition du ^{214}Bi (chaîne du ^{230}Th) qui contribue aux hautes énergies du spectre gamma.

6.3 Usine de fabrication du combustible

Le but de cette section est d'estimer les débits de doses perçues sur un atelier de l'usine de fabrication du combustible dans le cas de la fabrication de combustible MOX (U, Pu) O_2 et dans celui de la fabrication du combustible (Th, U) O_2 par le procédé MIMAS. Pour rappel (cf. 1.2.2.5 chapitre 1), en vue d'obtenir une bonne répartition du plutonium dans la céramique nucléaire, les poudres de plutonium et d'uranium appauvri subissent deux étapes de mélanges. La première consiste à broyer 30 % massique de PuO_2 avec l'uranium appauvri, puis un second mélange est réalisé dans un autre atelier pour atteindre la concentration souhaitée en plutonium. L'étape du mélange primaire a été choisie pour cette étude car c'est ici que la concentration en plutonium est la plus élevée tout comme le risque radiologique. Dans un premier temps la composition, l'activité et les spectres γ et neutron du cas de référence (U, Pu) O_2 sont présentés. L'activité γ de la poudre (Th, U) O_2 dominée par les descendants de ^{232}U croît après la séparation chimique de l'uranium pour devenir maximale au bout de 10.2 ans (cf. 1.1.4 chapitre 1), ainsi dans un second temps, les débits de doses à proximité de la boîte à gants pour différents temps séparant l'extraction de l'uranium, de la fabrication de la céramique, sont présentés. Finalement, en se plaçant dans le cas le plus défavorable (*ie* 10.2 ans après l'extraction de l'uranium), l'épaisseur de blindage γ supplémentaire nécessaire pour que le débit de dose soit équivalent au cas de référence (U, Pu) O_2 est déterminée. Avant toute chose la géométrie de la boîte à gant est définie.

6.3.1 Description du poste de broyage primaire

Le poste de broyage primaire des poudres fonctionne en automatique, la conduite normale des opérations est reportée en salle de conduite centralisée. Les tâches principales réalisées sur ce poste sont les suivantes : manutention des poudres (contenu dans des jarres ou bouteilles), pesée, identification ; l'accostage et le désaccostage du broyeur sur la bouteille de mélange primaire. L'homme intervient à proximité du poste pour changer les filtres de poussières. En effet, la manipulation des poudres met en suspension de fines particules de dioxyde de plutonium et d'uranium qu'il convient de piéger dans les filtres. De plus, l'homme peut intervenir sur le poste en cas d'incident de fonctionnement telle que la panne d'une balance, du broyeur, du rouleau convoyeur (transport entre les différents postes), etc... [RD92]. A ce moment-là, le mélange peut être présent dans la boîte à gants.

La géométrie de boîte à gants simulée provient des références [J.T94] et [A.R96] . C'est la géométrie (simplifiée) du poste de broyage primaire de l'usine de fabrication de MOX de BELGONUCLEAIRE à Dessel en Belgique. La boîte à gants, en acier inoxydable, comporte une fenêtre composée d'un centimètre de plexiglass sur laquelle est fixée une protection γ constitué de 3.6 cm de *kiowaglass*. Le *kiowaglass* est du verre plombé composé à 75 % massique de plomb. Le mélange primaire est contenu dans une bouteille cylindrique de 2 mm d'épaisseur. Cette bouteille est entourée d'un blindage neutronique en polyéthylène de 10 cm d'épaisseur. Cette protection en couronne est comprise entre deux couches d'acier de 0.5 mm. La figure 6.10 représente une coupe de la géométrie. Le contenu de la bouteille est 60 kg de mélange de poudre $((U, Pu)O_2$ ou $(Th, U)O_2$) dont 30 % massique de dioxyde de l'élément fissile.

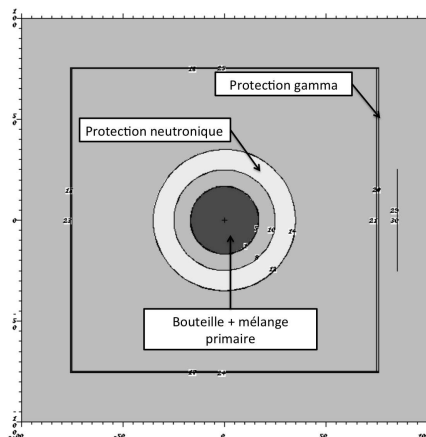


FIGURE 6.10 – Coupe de la géométrie de boîte à gants simulée avec MCNP

Le flux de γ ou de neutrons est calculé à 10 cm de la boîte à gants, puis converti en dose efficace par l'intermédiaire des coefficients de conversion antéro-postérieur (*Flux-to-dose conversion coefficients*) issue de la publication 116 de la CIPR [PHBE⁺10]. Ces coefficients sont donnés pour différentes énergies de particules incidentes et sont en unité de dose par unité de flux.

6.3.2 Définition du cas de référence

Quelques limitations sur la composition du plutonium admissible à MELOX existent : du fait de l'activité γ de l' ^{241}Am sa concentration ne peut excéder 3% du vecteur plutonium. De plus du fait de la chaleur et de l'émission de neutrons induits par la présence du ^{238}Pu , une limite sur le ratio $\frac{^{238}\text{Pu}}{\text{Pu}}$ est fixée à 3.4 % [PMC12]. Le plutonium utilisé ici provient de l'irradiation en REP d' UO_2 enrichi à 4.3 % molaire jusqu'à un taux de combustion de 55 GWj/tMLi . Ce combustible a été refroidi 5 ans avant la séparation chimique. Puis un délai avant la fabrication, tel que la concentration en ^{241}Am dans le vecteur plutonium soit de 3 %, a été observé. Ce délai est de 6 ans. Le tableau 6.1 présente la composition isotopique de ce vecteur plutonium. Ce plutonium atteint la limite en ^{241}Am et en ^{238}Pu , ainsi on se rapproche des limites en termes de rayonnements autorisés à MELOX.

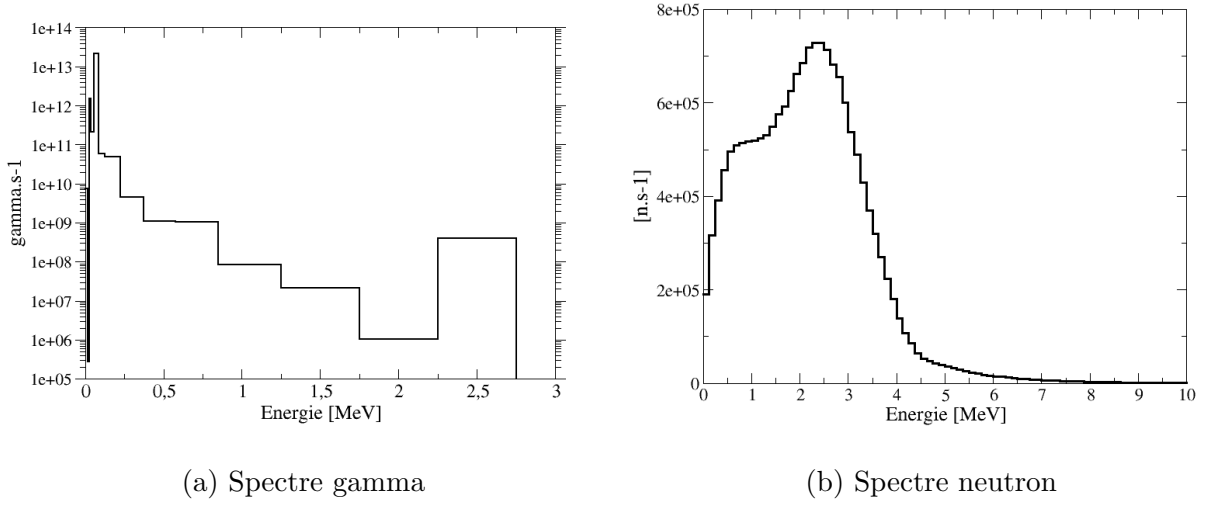


FIGURE 6.11 – Spectres gamma et neutron du mélange primaire $(U, Pu)O_2$

Tableau 6.1 – Composition du vecteur plutonium

Isotopes	(% mol.)
^{238}Pu	3.32
^{239}Pu	51.8
^{240}Pu	24.5
^{241}Pu	8.95
^{242}Pu	8.30
^{241}Am	3.0

Le mélange primaire consiste en 60 kg de poudre d'oxydes dont 30% massique de PuO_2 . Les activités γ et neutron de ce mélange sont respectivement de $2.36.10^{13}\gamma.s^{-1}$ et de $1.72.10^7 n.s^{-1}$. Les spectres γ et neutron sont donnés par la figure 6.11 où les définitions énergétiques sont celles utilisées par les calculs des sections 6.3.3 et 6.3.4. La densité de la poudre est de $3.5g.cm^{-3}$ [AD04]. La composition de l'uranium appauvri est donnée par le tableau 6.2, ses descendants ne sont pas pris en compte dans le calcul des termes sources, cependant les activités γ et neutron de l'uranium appauvri sont négligeables en comparaison de celles du plutonium.

Les neutrons proviennent principalement des réactions (α, n) sur l'oxygène induites par la forte activité α du ^{238}Pu qui est responsable du pic dans le spectre aux alentours de 2.5 MeV. L'activité neutron générée par cet isotope représente 50.5% du total. Le reste provient des fissions spontanées du ^{240}Pu (26.5 %), du ^{242}Pu (13.4

6.3. USINE DE FABRICATION DU COMBUSTIBLE

%) et de l' ^{241}Am (7.6 %).

75 % des 390 W de chaleur, générée par ces 60 kg de mélange de poudres, sont issus du ^{238}Pu . C'est d'ailleurs pour la chaleur qu'il génère et sa demi-vie que le dioxyde de ^{238}Pu est bien souvent utilisé dans les générateurs thermoélectriques à radioisotope.

L'activité γ provient pour 98.7 % des raies à 59 keV et à 27 keV de l' ^{241}Am . Le groupe d'énergie centré sur 2.5 MeV provient de la raie à 2.6 MeV du ^{208}Tl , ce dernier provenant de la chaîne de décroissance du ^{236}Pu .

Tableau 6.2 – Vecteur Isotopique de l'uranium appauvri

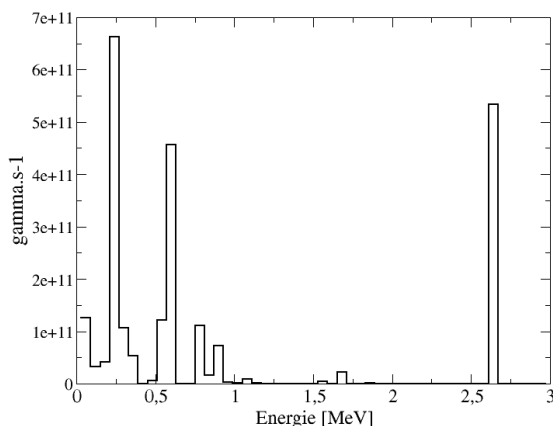
U	% mol.
238	99.799
235	0.200
234	0.001

6.3.3 Temps séparation-fabrication

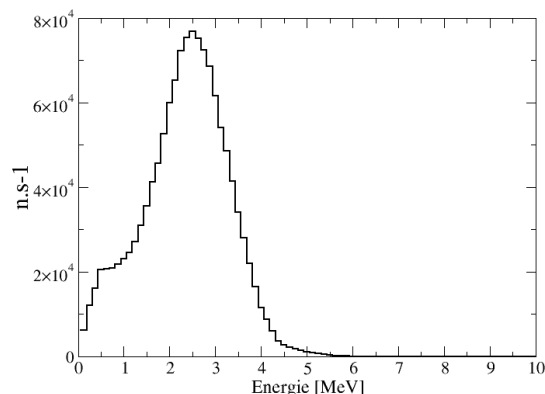
L'activité γ de l'uranium issue du retraitement de combustibles thoriés croît après l'extraction chimique du fait de l'apparition des descendants de l' ^{232}U . L'activité γ de cet uranium dépend de la teneur en ^{232}U et du temps entre l'extraction chimique et la fabrication du combustible $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$. Ainsi l'étude concerne deux uranium différents ayant vieilli 5 ans avant l'extraction chimique puis une durée variable entre l'extraction et la fabrication. Le premier "uranium" provient de l'irradiation en REP chargé en $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ irradié jusqu'à 55GWj/tMLi . Le second provient de l'irradiation en CANDU chargé en $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ irradié jusqu'à 7.6GWj/tMLi . Ces deux uranium correspondent aux cas extrêmes de proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium calculé dans le chapitre 3. La teneur molaire en ^{232}U de ces différents uranium sont, au déchargement, de respectivement 0.43 % et de 0.048% pour le REP et le CANDU (cf. 4.2.2 chapitre 4).

Le mélange (également 60 kg de poudre) consiste ici en 30% massique de UO_2 et 70% de $^{232}\text{ThO}_2$. Les débits de dose à 10 cm de la boîte à gants sont calculés pour les cas CANDU et REP et pour différents temps entre l'extraction chimique et la fabrication. Le thorium est du ^{232}Th pur.

A titre de comparaison avec le cas de référence les spectres γ et neutron de la poudre $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ dont l'uranium provient du REP et qui a refroidi pendant 5 ans



(a) Spectre gamma



(b) Spectre neutron

FIGURE 6.12 – Spectres gamma et neutron du mélange primaire $(Th,U)O_2$ (1 mois après séparation)

avant la séparation puis 1 mois avant fabrication sont présentés dans la figure 6.12.

Les activités γ et neutron (à un mois) sont plus faibles que pour le cas de référence : respectivement $2.39 \cdot 10^{12} \gamma.s^{-1}$ et $1.31 \cdot 10^6 n.s^{-1}$ cependant 24% de l'activité γ provient de la raie à 2.6 MeV du ^{208}Tl qui à une probabilité bien plus importante d'atteindre le travailleur que la raie à 60 keV du cas de référence. L'activité neutron provient presque exclusivement des réactions (α, n) provoqué par les sept décroissances α de la chaîne de l' ^{232}U . Étant donné que l'activité neutron est beaucoup plus faible que dans le cas de référence et que le spectre y est semblable, la dose neutron sera beaucoup plus faible pour le cas $(Th,U)O_2$.

La question à laquelle tente de répondre cette section est la suivante : Est-il possible de rester, en terme de doses, au même niveau voir en dessous du cas de référence si le combustible $(Th,U)O_2$ est fabriqué rapidement après l'extraction chimique de l'uranium.

Les résultats sont consignés dans le tableau 6.3 . Ils sont données comme le rapport du débit de dose calculé pour un uranium (provenant du CANDU ou du REP) et un temps après séparation donné sur le débit de dose du cas de référence $(U,Pu)O_2$. Les résultats sont détaillés pour la dose neutron et la dose γ .

6.3. USINE DE FABRICATION DU COMBUSTIBLE

Tableau 6.3 – Comparaison des doses entre le cas de référence et la poudre $(Th, U)O_2$

Uranium provenant du REP			
Temps	$\frac{Dose \gamma(Th, U)O_2}{Dose \gamma(U, Pu)O_2}$	$\frac{Dose \text{ neutron}(Th, U)O_2}{Dose \text{ neutron}(U, Pu)O_2}$	$\frac{Dose \text{ totale}(Th, U)O_2}{Dose \text{ totale}(U, Pu)O_2}$
3 jours	18	$6.9 \cdot 10^{-2}$	6
1 mois	1200	$9.1 \cdot 10^{-2}$	400
1 an	12000	0.22	4000
6 ans	34000	0.48	12000
10 ans	36000	0.50	12000
Uranium provenant du CANDU			
Temps	$\frac{Dose \gamma(Th, U)O_2}{Dose \gamma(U, Pu)O_2}$	$\frac{Dose \text{ neutron}(Th, U)O_2}{Dose \text{ neutron}(U, Pu)O_2}$	$\frac{Dose \text{ totale}(Th, U)O_2}{Dose \text{ totale}(U, Pu)O_2}$
3 jours	2.3	$1.2 \cdot 10^{-2}$	0.8
1 mois	100	$1.3 \cdot 10^{-2}$	35
1 an	1200	$2.7 \cdot 10^{-2}$	440
6 ans	3600	$5.5 \cdot 10^{-2}$	1200
10 ans	3800	$5.7 \cdot 10^{-2}$	1300

Le débit de dose, à trois jours après séparation, est inférieur pour le $(Th, U)O_2$ (CANDU) au cas de référence. Cependant fabriquer le combustible en moins de 3 jours après la séparation de l'uranium semble peu réaliste et très risqué. Pour le cas REP le débit de dose à 3 jours après la séparation est déjà 6 fois supérieur au cas de référence. Une solution pourrait être de s'accorder un délai maximum d'un mois et de diminuer les quantités de mélanges traités d'un facteur de respectivement 400 pour le REP et de 35 pour le CANDU augmentant du même coup la taille et le prix de l'installation d'un facteur équivalent. Ceci semble économiquement peu viable. Une autre solution pourrait être d'augmenter l'épaisseur de la protection γ . C'est l'objet de la section suivante.

6.3.4 Blindage γ supplémentaire

Le but de cette section est de déterminer l'épaisseur de kiowaglass supplémentaire qu'il faut ajouter pour que le débit de dose soit équivalent au cas de référence. Le calcul est réalisé pour le cas le plus défavorable, à savoir pour un délai de 10.2 ans après séparation chimique (activité γ de 2.6 MeV maximum). Plusieurs calculs avec une épaisseur de kiowaglass variable ont été réalisés. Ainsi l'épaisseur supplémentaire nécessaire est de 42 cm pour le cas REP et de 33 cm pour le cas CANDU. Ces épaisseurs sont inconcevables puisqu'elles ne permettraient aucunement de ma-

nipuler quoi que ce soit à l'intérieur de la boîte à gants (la taille des bras humain n'étant pas extensible).

Conclusion

Cette étude montre que la radioprotection de l'usine de fabrication du combustible doit-être complètement repensée dans le cas de la fabrication de combustible $(Th, U)O_2$ par le procédé MIMAS. L'utilisation de cellules blindées où les travailleurs n'interviennent que par télémanipulation semble incontournable. D'autres techniques de fabrication de combustible existent et permettraient de réduire les doses. La technique par imprégnation semble prometteuse. Le principe est le suivant : après avoir préparé des pastilles de ThO_2 de faible densité (~ 75 % de la densité théorique) en simple boîte à gants, du nitrate d'uranyle (liquide) est imprégné dans la pastille. Après séchage, calcination et frittage, la pastille de $(Th, U)O_2$ est prête [Ben05] [KNS⁺08]. Cette méthode a l'avantage de supprimer la présence de poudre d' UO_2 (extrêmement radio-toxique par inhalation) et de ne pas avoir à manipuler un mélange à 30 % d'uranium. De plus, le broyeur (pièce mécanique donc qui tombe en panne) est absent de la technique d'imprégnation, ce qui laisse espérer un nombre d'interventions pour causes de pannes moins fréquentes. Cependant ce procédé, n'est pas, à l'heure actuelle, développé à une échelle industrielle.

Conclusion

CONCLUSION

La raréfaction des ressources énergétiques fossiles, les problèmes climatiques engendrés par leurs utilisations, la croissance de la population et du niveau de vie laissent penser que l'énergie nucléaire occupera une place qui restera importante dans le mixe énergétique mondial. L'utilisation massive de réacteurs nucléaires pourrait amener à des tensions sur les ressources en uranium, l'utilisation de réacteurs surgénérateurs basés sur le cycle du thorium ou de l'uranium serait donc de rigueur pour permettre le développement à plus grande échelle de cette énergie de façon pérenne. Ceci étant, au vue des actualités de ces dernières années : perte de confiance de l'opinion mondiale dans l'énergie nucléaire du fait de la catastrophe de Fukushima, et de l'euphorie autour des gaz de schistes, la mise en place des filières surgénératrices n'est pas attendue avant un bon demi-siècle. Dans l'intervalle, l'utilisation du thorium dans des technologies actuelles semble intéressante. En effet, du fait de la longue durée de vie du noyau fissile du cycle du thorium (^{233}U) comparée à celle du cycle de l'uranium (^{239}Pu et ^{241}Pu ($T_{1/2} = 14\text{ans}$)), l'utilisation du cycle du thorium permet une plus grande flexibilité dans la gestion du cycle (l'impact des temps de latence inter-cycle sur la quantité de noyaux fissiles est nul). Ceci permettrait également de disposer de stocks de fissiles de meilleurs qualités en attendant l'avènement d'une filière au thorium surgénératrice.

En revanche, l'irradiation du thorium entraîne la synthèse de l'indésirable ^{232}U , dont les descendants émettent des rayonnements γ très pénétrants, problématiques pour la radioprotection de l'aval du cycle.

Ainsi la première partie de cette thèse a permis de quantifier la production d' ^{232}U en REP pour les combustibles du cycle actuel (UO_2 , MOX , URTe) et du cycle du thorium (Th^{233}U , ThPu). Et de comprendre les différents phénomènes influençant sa synthèse. Pour ce faire un ensemble d'outils ont été développés (cf. chapitre 2 sections 2.3 et 2.4) :

- Méthode des inventaires adjoints (N^+) qui permet de :
 - Calculer la production d' ^{232}U par rapport à une perturbation proche de la situation de référence (*eg* production supplémentaire d' ^{232}U induite par la présence initiale, dans le combustible, d'impuretés)
 - Déterminer la probabilité qu'a un noyau présent initialement dans le combustible de devenir, à l'issue de l'irradiation, de l' ^{232}U
- Méthode *voie* : cette méthode consiste à "re-résoudre" les équations de Bateman en évolution en éteignant toutes les réactions à l'exception de celles présentes

CONCLUSION

dans la voie d'intérêt, permettant ainsi de connaître la quantité d' ^{232}U produite par telle ou telle voie.

De plus, une routine permettant de généraliser la prise en compte de la production de noyaux isomériques créés par réactions nucléaires a été implémentée, ce qui a permis de prendre en compte correctement la synthèse d' ^{232}U en combustible UO_2 et MOX.

Ces outils et le code MURE ont permis de montrer qu' en REP les combustibles thoriés produisent environ un million de fois plus d' ^{232}U que les combustibles UO_2 ou MOX. (cf. chapitre 4)

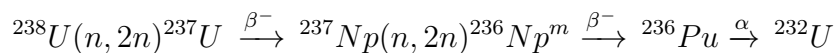
Pour tous les combustibles étudiés, l'inventaire en ^{232}U n'atteint pas l'équilibre au bout de l'irradiation si bien que l'augmentation de la teneur en noyaux fissiles (qui permet d'augmenter le taux de combustion maximum atteignable) entraîne une augmentation de la production d' ^{232}U .

En combustible UO_2 comme en MOX les voies principales de synthèse de l' ^{232}U passent par la décroissance du ^{236}Pu ($T_{1/2} = 2.86$ ans) si bien que pour le combustible REP UO_2 (4.3%,55GWj/tMLi) la quantité d' ^{232}U croît de plus d'un facteur 2 entre la fin de l'irradiation et après 12 ans de refroidissement. L'impact de l'enrichissement (et donc du taux de combustion maximum) sur les quantités d' ^{232}U est important : la quantité d' ^{232}U dans le cycle (*ie* en $\text{mg}/(\text{GWe.an})$) est triplée entre 3% et 5% d'enrichissement.

La décroissance de l' ^{234}U et de l' ^{235}U , dans l'intervalle de temps séparant la purification chimique du minerai d'uranium de la mise en réacteur du combustible UO_2 , entraîne l'apparition des impuretés : ^{230}Th et ^{231}Pa . Ces impuretés apportent une surproduction d' ^{232}U de 10 % par an séparant la purification de l'irradiation.

Comparativement à un combustible UO_2 de même enrichissement et irradié au même taux de combustion la production d' ^{232}U est 4 fois plus importante en URTe à cause de la présence dans l'URTe,avant irradiation, d' ^{236}U et d' ^{232}U .

En combustible MOX la synthèse d' ^{232}U provient en grande partie de la voie



Le plutonium n'est responsable que de 7 % de la production en fin d'irradiation. De ce fait la production d' ^{232}U est trois fois plus faible en combustible MOX qu'en

CONCLUSION

UO_2 (pour le même taux de combustion). Un plutonium provenant du retraitement d'un combustible UO_2 ayant refroidi 3 ans avant séparation puis deux ans avant la fabrication contient environ 120ppm de ^{237}Np ce qui entraîne une majoration de la production d' ^{232}U d'environ 5.6 % comparativement à un combustible MOX dont le plutonium ne contient pas, initialement, de ^{237}Np .

La synthèse de l' ^{232}U dans le combustible $Th^{233}U$ provient, comme dans le combustible $ThPu$, à plus de 99 % de la voie $^{232}Th(n, 2n)^{231}Th \xrightarrow{\beta^-} ^{231}Pa(n, \gamma)^{232}Pa \xrightarrow{\beta^-} ^{232}U$. L'augmentation de la teneur en ^{233}U entraîne, sur l'intervalle [3%-4%]d' ^{233}U , une production de 40g/tMLi/% d' ^{232}U . Pour le ThU (3.55%, 55GWj/tMLi), la production d' ^{232}U est de 94 g/tMLi correspondant à une proportion d' ^{232}U dans le vecteur uranium de 0.39% contre 0.43% pour le ThPu (77 g/tMLi), 5.5 ppb pour l' UO_2 (5 g/tMLi), 1.94 ppb pour le MOX (1.1 g/MLi).

Le minerai de thorium, souvent mêlé à l'uranium, contient du ^{230}Th (précurseur d' ^{232}U) issu de la chaîne de décroissance de l' ^{234}U . La quantité de ^{230}Th dans le vecteur thorium dépend du ratio $\frac{Th}{U}$ du minerai. Pour un ratio $\frac{Th}{U} = 1$ la surproduction d' ^{232}U est de seulement 5 %, l'impact du type de minerai de thorium utilisé pour la confection du combustible ThU est donc faible.

Pour le combustible ThPu, la qualité du plutonium influence la production d' ^{232}U (impact du plutonium sur la section efficace $^{231}Pa(n, \gamma)$). Ainsi, entre un bon et un mauvais plutonium, la production d' ^{232}U est multiplié par 1.43. Pour ce combustible l'impact du minerai de thorium utilisé est encore plus faible que pour le cas ThU et représente une augmentation de 3.3 % de la quantité d' ^{232}U (pour $\frac{Th}{U} = 1$).

Des études de sensibilité ont montré que la prédiction des inventaires en ^{232}U seraient plus précises pour le combustible UO_2 si les sections efficaces $^{237}Np(n, 2n)$ et $^{236}U(n, \gamma)$ étaient connues plus précisément. Pour le combustible ThU la sensibilité du $^{231}Pa(n, \gamma)$ est importante et une seule mesure a été réalisée. Il serait intéressant de mesurer cette section efficace pour affiner les prédictions. De même, la section efficace $^{232}U(n, \gamma)$ est inconnue or sa sensibilité deviendra importante en cas de multi-recyclage du vecteur uranium. Sa mesure serait donc appréciable.

Les différences entre les bases de données entraînent des écarts importants sur la quantité d' ^{232}U en fin d'irradiation. Comparativement à JEFF3.1, l'utilisation de ENDF7.1 implique une production d' ^{232}U 9 % plus importante (18 % pour le ^{236}Pu) en UO_2 et de 11 % supérieur pour le combustible ThU.

La comparaison de la production d' ^{232}U entre les filières REP, RNR et CANDU (cf. chapitre 4) a permis de montrer que le REP est le pire système quant à la synthèse

CONCLUSION

d' ^{232}U , à l'issu du premier cycle, aussi bien en combustible ThU que ThPu. Le RNR tire son avantage de la lente évolution de l'inventaire jusqu'à l'équilibre et le CANDU de son faible taux de combustion. Pour les deux combustibles, l'inventaire d' ^{232}U à l'équilibre est supérieur en RNR qu'en REP (car $\sigma_{^{232}\text{U}(n,abs)}$ est dix fois plus faible que pour le REP), et inférieur en CANDU qu'en REP (car $\sigma_{^{232}\text{Th}(n,2n)}$ est plus faible qu'en REP).

La seconde partie de cette thèse a permis d'estimer l'impact de l'introduction du thorium dans le cycle actuel sur la radioprotection de l'aval du cycle du fait de la présence de l' ^{232}U . Des calculs de débits de dose à la surface d'un château de transport, typique du cycle actuel français, ainsi qu'au niveau des boîtes à gants de l'usine de fabrication de combustibles, ont été réalisés. Ces études ont été entreprises avec les matières du cycle actuel faisant office de référence et des matières issues de l'irradiation en REP de combustibles thoriés.

Afin de réaliser ces calculs de radioprotection la connaissance des termes sources (émissions γ et neutrons) est indispensable. Ainsi un code de caractérisation des sources radioactives du cycle du combustible a été développé et validé.

Ce code de calcul baptisé CHARS (CHAracterization of Radioactives Sources) (cf. chapitre 5) permet de :

- Calculer les spectres γ de la matière irradiée. Les γ pris en charge sont les γ des décroissances suivantes : α , β^- , β^+ , capture électronique et transition isomérique. Ce module a été validé par l'intermédiaire d'une mesure de spectre γ d'un minerai de thorium. Toutes les raies présentes sont correctement prédites et les écarts proviennent principalement de la non prise en compte de la taille, finie, de l'échantillon (auto-protection du caillou non pris en charge). De plus une comparaison avec le code CESAR a été entreprise, permettant de valider le calcul pour la matière irradiée et donc de valider le couplage MURE/CHARS. Les différences entre CESAR et MURE/CHARS proviennent principalement des écarts entre les différentes données nucléaires utilisées et en particulier sur les différences dans les données de structure nucléaire du ^{106}Rh entre la base ENSDF et les données du LNHB.
- Calculer, avec l'aide de MCNP et du calcul des spectres β^- , le rayonnement de freinage issu des β^- . Les spectres β^- sont calculés à l'aide de la théorie de Fermi, le calcul prenant en compte les premières transitions interdites. Le calcul des spectres β^- a été validé à l'aide d'une comparaison avec un code

CONCLUSION

développé à Subatech. En utilisant MCNP et le calcul des spectres β^- la part du rayonnement de freinage dans le spectre γ total, dans différents combustibles usés, pour différents temps de refroidissement, a été estimée.

- Calculer le spectre neutron issu des fissions spontanées et des réactions (α, n) . Pour ce faire le calcul des spectres α est nécessaire et a donc également été incorporé dans CHARS. Le calcul des spectres neutrons a été validé par l'intermédiaire d'un benchmark qui comporte des calculs d'un autre code (SOURCES) et des résultats de mesures de différents échantillons de dioxyde de plutonium. L'accord entre les mesures et CHARS est acceptable et la forme des spectres est en très bon accord avec le code SOURCES.

CHARS est également incorporé dans l'interface graphique de MURE. Ceci permet d'extraire de façon conviviale les différents spectres en format MURE pour d'éventuels calculs de radioprotection. De plus, CHARS, en synergie avec MURE, permet de faciliter la définition des termes sources dans MCNP.

CHARS a été appliqué au calcul de radioprotection dans le cycle au niveau du transport du combustible usé et de la fabrication du combustible Th/U et MOX. Ces études montrent que le combustible $Th^{233}U$ (3.55%, 55GWj/tMLi) présente un avantage sur le combustible UO_2 au niveau du transport du combustible usé. En effet la chaleur résiduelle, ainsi que le débit de dose à la surface du colis sont inférieurs en combustible ThU sur une période allant de 6 mois à 4.5 ans après déchargement. Cela provient, pour la chaleur résiduelle, d'une production moindre de ^{106}Rh en ThU, et pour le débit de dose, à une production quasi-inexistante de ^{244}Cm et ^{242}Cm impliquant un débit de dose neutron quasi nul en ThU.

L'utilisation du thorium comme élément fertile (combustible ThPu) n'apporte pas d'avantage comparativement au MOX. En effet la chaleur résiduelle est très semblable (voir légèrement supérieur). En revanche le débit de dose (provenant, pour les combustibles au plutonium, en majorité des neutrons et des γ secondaires) est un peu plus faible pour le combustible ThPu du fait d'un facteur de multiplication du colis (k_{eff}) plus faible. Ainsi, l'utilisation des châteaux de transport existants semble convenir aux combustibles thoriés.

Au niveau de l'usine de fabrication du combustible, l'étude montre que la radioprotection doit être complètement revisitée, en effet même en fabricant le combustible ThU (\vec{U} contaminé à l' ^{232}U) trois jours après l'extraction chimique de l'uranium du combustible ThPu, le débit de dose est 6 fois supérieur au cas de référence MOX. De

CONCLUSION

plus les protections radiologiques à rajouter sur la boîte à gants pour atteindre des débits de doses équivalents au cas de référence, sont colossale : 42 cm d'épaisseur de verre plombé ce qui empêche toute manipulation en boîte à gants.

L'impact de l'utilisation du thorium sur le cycle du combustible mériterait des études plus précises sur l'ensemble du cycle du combustible comme le transport du nitrate d'uranyle contaminé à l' ^{232}U jusqu'à l'usine de conversion puis de fabrication de nouveaux combustibles. Il serait d'ailleurs plus judicieux que le retraitement du combustible $(\text{Th}, \text{Pu})\text{O}_2$ utilisé, la conversion du nitrate d'uranyle ainsi que la fabrication du combustible $(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2$ aient lieu au même endroit afin d'éviter ces transports.

Au niveau de la validation du code CHARS, il serait intéressant de confronter un calcul de spectre γ à une mesure de spectre γ de combustible utilisé. Pour le développement de CHARS la prise en compte d'autres noyaux que l' ^{17}O et ^{18}O serait appréciable et notamment le ^{19}F afin de pouvoir calculer les émissions neutrons des composés fluorés tels que l' UF_4 et l' UF_6 . Enfin à partir du code CHARS il serait possible, moyennant quelques nouveaux développements, de pouvoir remonter à la composition ou à l'âge d'un échantillon à partir d'un spectre γ ou/et α mesuré.

Bibliographie

- [AD04] S. Evo S. Perrin V. Rouyer A. Devita, J.L Voitellier. Criticality safety issues associated with mox fuel fabrication. In *Workshop on the need of integral critical experiments with low-moderated MOX fuels*, OCDE/AEN, Issy-les-Moulineaux, FRANCE, 14-15 april 2004. 183
- [AK08] M.C. Duijvestijn A.J. Koning, S. Hilaire. Talys-1.0. In EDP Sciences Vol. 211, editor, *Proceedings of the International Conference on Nuclear Data for Science and Technology*, Nice, France, 2008. 151
- [A.R96] K. Abrahams J.L. Kloosterlan H.Gruppelaar P.Brusselaers G. Evrard A. La Fuente Th. Maldague S. Pilate A.Renard. *Recycling and transmutation of nuclear waste*, chapter Chapter III.2. Impact on fuel refabrication, pages 101–139. ECSC-EC-EAEC, 1996. 181
- [Arr06] Nor : Soct0611077a, 2006. 12
- [Bar96] P. Barbrault. A plutonium-fueled high-moderated pressurized water reactor for the next century. *Nuclear Science and Engineering*, 1996. 89
- [Ben05] Thorium fuel cycle - potential benefits and challenges, 2005. 7, 15, 16, 17, 22, 82, 187
- [Bid05] A. Bidaud. *Analyses de sensibilité et d'incertitude de données nucléaires : contribution à la validation d'une méthodologie utilisant la théorie des perturbations : application à un concept innovant : réacteur à sels fondus thorium à spectre épithermique*. PhD thesis, Université Paris 11, 2005. 50
- [Bri10] Julie Brizi. *Cycles uranium et thorium en réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Aspects neutroniques et déchets associés*. PhD thesis, Institut de physique nucléaire d'orsay, 12 Octobre 2010. xv, 7, 9, 10, 28, 37, 43

BIBLIOGRAPHIE

- [Bro02] P. Bronche. *Le nucléaire expliqué par des physiciens*. EDP Sciences, 2002. 24
- [Cap09] Nicolas Capellan. *Couplage 3D neutronique thermohydraulique. Développement d'outils pour les études de sureté des reacteurs innovants*. PhD thesis, Institut de physique nucléaire d'orsay, 25 novembre 2009. 27, 28
- [Cla93] J.C. Clayton. The shippingport pressurized water reactor and light water breeder reactor. *WAPD-T-30007*, 1993. 17
- [CO09] L. Blachet C. Otton. Transport of spent nuclear fuels, high and intermediate level wastes : A continuous challenge. In *WM2009*, Phoenix, USA, 2009. 178
- [Dol10] X. Doligez. *Influence du retraitement physico-chimique du sel combustible sur le comportement du MSFR et sur le dimensionnement de son unité de retraitement*. PhD thesis, Universités de Grenoble, 2010. 18
- [ea96] J.R. Parrington et al. Nuclides and isotopes. *General Electric Nuclear Energy*, 15th edition, 1996. 37
- [ea06] J.M Vidal et al. Cesar : A code for nuclear fuel characterisation. In *Proceedings of Waste Management conference*, 2006. 136
- [ePP08] N. Kerkar et P. Paulin. *Exploitation des coeurs REP*. EDP Sciences, 2008. 42
- [FCE⁺12] M Fallot, S Cormon, M Estienne, A Algora, VM Bui, A Cucoanes, M Elnimr, L Giot, D Jordan, J Martino, et al. New antineutrino energy spectra predictions from the summation of beta decay branches of the fission products. *Physical review letters*, 109(20) :202504, 2012. 125
- [Fer34] E. Fermi. Versuch einer theorie der β -strahlen. i. *Zeitschrift fur Physik*, 88 :161–177, 1934. 123
- [For11] P. Fortier. Overview of used fuel transport casks. In *NWTRB*, Salt Lake city, USA, 2011. 166, 178
- [FOS⁺05] Michel-Sendis F., Meplan O., David S., Nuttin A., and Bidaud A. et al. Plutonium incineration and uranium 233 production in thorium fueled light water reactors. In *GLOBAL 2005 : International Conference on Nuclear Energy Systems for Future Generation and Global Sustainability*, Japan, 2005. 28

BIBLIOGRAPHIE

- [Gre07] D. Grenech. Rethinking the thorium fuel cycle : an industrial point of view. In *ICAPP07*, Nice, FRANCE, 2007. 22
- [Gui09] P. Guillemin. *Recherche de la haute conversion en cycle Thorium dans les réacteurs CANDU et REP*. PhD thesis, Institut polytechnique de Grenoble, 2009. xi, 7, 35, 37, 40, 41, 42
- [HAR13] Michel HARTENSTEIN. Transport des matières radioactives du cycle du combustible. *Techniques de l'ingénieur Cycle du combustible nucléaire : de la mine à la fabrication du combustible*, base documentaire : TIB201DUO., 2013. 166, 171
- [Hub12] P. Huber. On the determination of anti-neutrino spectra from nuclear reactors. *Phys.Rev. C84*, 2012. 125
- [Hug97] H.G. Hughes. Status of electron transport in mcnp, los alamos national laboratory, nm la-ur-97-1368, 1997. 121
- [J.T94] S. Pilate A. Renard J. Journet J.Thibault. Impact of actinide recycling on mox fuel fabrication. In *International Symposium on actinides : processing and materials*, San Francisco, USA, 1994. 181
- [Kha10] Wassim Khamakhem. *Étude de l'évolution du Combustible dans des Réacteurs Rapides de IVème Génération : Impact Des Données Nucléaires sur Leur Performance*. PhD thesis, Université Paris 11, 2010. 50
- [KNS⁺08] T.R.G. Kutty, M.R. Nair, P. Sengupta, U. Basak, Arun Kumar, and H.S. Kamath. Characterization of (th,u)o2 fuel pellets made by impregnation technique. *Journal of Nuclear Materials*, 374 :9 – 19, 2008. 187
- [Lab13] Brookhaven National Laboratory. National nuclear data center, août 2013. www.nndc.bnl.gov/exfor/endl00.jsp. 174
- [Lig97] J. Ligou. *Introduction au génie nucléaire*. PPUR presses polytechniques, 1997. 21
- [Loc92] HF Locke. *Summary of the Results of the Comparison of Calculations and Measurements for the TN12 Flask Carried Out Under the NEA-CRP Intercomparison of Shielding Codes*. Safety Engineering Systems Division, RPSCD Department, AEA Technology, 1992. 171, 172
- [Man] MCNP Manual. Mcnp—a general monte carlo n-particle transport code, version 5, lanl, april 2003. 26
- [M.J63] M.J.Berger. Monte carlo calculation of the penetration and diffusion of fast charged particles. In *Methods in Computational Physics Vol. 1*,

BIBLIOGRAPHIE

- editor, *Academic Press*, page 135. B.Alder, S.Fernback, M. Rotenberg, 1963. 120
- [M.J11] J. Chang M.J.Berger, J.S. Coursey. Stopping-power and range tables for electrons, protons, and helium ions, December 2011. <http://nist.gov/pml/data/star/index.cfm>. 119
- [MK09] R.W. Mills M.A. Kellett, O. Bersillon. The jeff-3.1/3.1.1 radioactive decay data and fission yields sub-libraries, 2009. 137
- [MS06] Franco Michel-Sendis. *Contributions à l'étude de la production d²³³U en combustible MOX-ThPu en réacteur à eau sous pression. Applications aux scénarios de transition vers des concepts isogénérateurs Th/²³³U en spectre thermique. Développement du code MURE d'évolution du combustible*. PhD thesis, Institut de physique nucléaire d'orsay, 21 decembre 2006. 28
- [MTED98] Joseph G Meert, Trond H Torsvik, Elizabeth A Eide, and Sven Dahlgren. Tectonic significance of the fen province, s. norway : constraints from geochronology and paleomagnetism. *The Journal of geology*, 106(5) :553–564, 1998. 131, 133
- [Mur71] M.S.S. Murthy. Shape and average energy of beta-particle spectra. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, 22(2) :111 – 123, 1971. 124
- [NGB⁺12] A. Nuttin, P. Guillemain, A. Bidaud, N. Capellan, R. Chambon, S. David, O. Méplan, and J.N. Wilson. Comparative analysis of high conversion achievable in thorium-fueled slightly modified {CANDU} and {PWR} reactors. *Annals of Nuclear Energy*, 40(1) :171 – 189, 2012. 35, 40
- [OAO⁺05] Meplan O., Nuttin A., Laulan O., David S., and Michel-Sendis F. et al. Mure : Mcnp utility for reactor evolution - description of the methods, first applications and results. In *ENC 2005 - European Nuclear Conference. Nuclear Power for the XXIst Century : From basic research to high-tech industry*, France, 2005. 28
- [Pat02] L. Patarin. *Le cycle du combustible nucléaire*. EDP Sciences, 2002. 22, 24
- [PHBE⁺10] N. Petoussi-Henss, W.E. Bolch, K.F. Eckerman, A. Endo, N. Hertel, J. Hunt, M. Pelliccioni, H. Schlattl, and M. Zankl. Conversion coeffi-

BIBLIOGRAPHIE

- cients for radiological protection quantities for external radiation exposures. *Annals of the {ICRP}*, 40 :1 – 257, 2010. 172, 173, 182
- [PK66] E.S. Bettis H.F. Bauman W.L. Carter et al. P.R. Kasten. Summary of molten-salt breeder reactor design studies, 1966. 18
- [PMC12] F. Bailly T. Gain F. Lelièvre G. Senentz P. Murray and E. Collins. Opportunities for the multi recycling of used mox fuels in the us. In *WM2012*, Phoenix, USA, 2012. 182
- [Rad11] D. Radford. Radware, June 2011. radware.phy.ornl.gov. 133
- [R.B96] R.B.Firestone. Table of isotopes. *General Electric Nuclear Energy*, 8th edition, 1996. 37
- [RD92] R. Lorenzelli R. Ducroux. Intégration de la radioprotection à la conception de l’usine melox. *Radioprotection*, 27 :129–139, 1992. 181
- [Sho01] E.F Shores. Data updates for the sources-4a computer code. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 179(1) :78 – 82, 2001. xiv, 146, 206
- [Sho05] Erik F Shores. Plutonium oxide benchmark problems for the sources code. *Applied radiation and isotopes*, 62(5) :699–704, 2005. 154
- [Sog12] R. Sogbadji. *Neutronic study of the mono-recycling of americium in PWR and of the core conversion in MNSR using the MURE code*. PhD thesis, Université Paris-Sud and University of GHANA, 2012. 35
- [Tea03] X-5 Monte Carlo Team. *MCNP- A general Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, LA-UR-03-1987*, chapter Volume I, Appendix H. 2003. 146
- [THB11] A Trkov, M Herman, and DA Brown. Endf-6 formats manual. Technical report, Report BNL-90365-2009 Rev. 2, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 2011. 173
- [TM06] Keiichi SHIBATA Toru MURATA, Hiroyuki MATSUNOBU. Evaluation of the (α ,xn) reation data for jendl/an-2005, 2006. 151
- [Tul01] J.K. Tuli. Evaluated nuclear structure data file - a manual for preparation of data sets, national nuclear data center, brookhaven national laboratory, report bnl-ncs-51655-01/02-rev., February 2001. 116
- [Tul13] J.K. Tuli. *Nuclear Data Sheets*. Elseiver Inc., Brookhaven National Laboratory, Upton, NY, USA, 2013. 116

- [TV01] A. C. Thompson and D. Vaughan, editors. *X-ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, jan 2001. 118
- [URT07] Management of reprocessed uranium current status and future prospects, 2007. 65
- [Val12] V. Vallet. *Recherche de l'économie des ressources naturelles par des études de conception de coeurs de réacteurs à eau légère et à haut facteur de conversion à combustibles mixtes thorium/uranium/plutonium*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2012. 7
- [web09] NEA website. Mure, package id : Nea-1845/01, Avril 2009. www.oecd.nea.org/tools/abstract/detail/nea-1845. 28
- [Wil86] M.L. Williams. Perturbation theory for nuclear reactor analysis. *CRC Handbook of Nuclear Reactors Calculations*, 1986. 50
- [WPC⁺05] WB Wilson, RT Perry, WS Charlton, TA Parish, and EF Shores. Sources : a code for calculating (α , n), spontaneous fission, and delayed neutron sources and spectra. *Radiation protection dosimetry*, 115(1-4) :117–121, 2005. 154
- [YV05] Gilles Youinou and Alfredo Vasile. Plutonium multirecycling in standard pwr's loaded with evolutionary fuels. *Nuclear science and engineering*, 151(1) :25, 2005. 74
- [Zie] James F. Ziegler. The stopping and range of ions in matter (srim), December. <http://www.srim.org>. 153

Annexes

Annexe A

Données nucléaires relatives au calcul des neutrons de fissions spontanées

Noyau	Neutron moyen total émis par fission ($\bar{\nu}$)	Rapport de Branchement de fission spontanée [%]	a [MeV]	b [MeV]
^{230}Th	1.39	4.10^{-12}	0.6620	6.528
^{232}Th	1.50	$1.1.10^{-9}$	0.5934	8.030
^{231}Pa	1.7100	2.10^{-11}	0.7981	4.572
^{232}U	1.7100	$2.7.10^{-12}$	0.8922	3.723
^{233}U	1.7600*	6^{-11}	0.8548	4.032
^{234}U	1.8000	$1.64.10^{-9}$	0.7712	4.924
^{235}U	1.8700	7.10^{-9}	0.7747	4.852
^{236}U	1.9000	$9.4.10^{-8}$	0.7352	5.357
^{238}U	2.0000	$5.45.10^{-5}$	0.6483	6.811
^{237}Np	2.0500*	2.10^{-10}	0.8334	4.241
^{236}Pu	2.1200	$1.9.10^{-7}$	0.9883	3.104
^{238}Pu	2.2100	$1.9.10^{-7}$	0.8478	4.169
^{239}Pu	2.3200	$3.1.10^{-10}$	0.8852	3.803
^{240}Pu	2.1510	$5.7.10^{-7}$	0.7949	4.689
^{241}Pu	2.2500*	$2.4.10^{-14}$	0.8425	4.152
^{242}Pu	2.1410	$5.5.10^{-4}$	0.8192	4.367
^{244}Pu	2.2900	0.121	0.6947	6.004

DONNÉES NUCLÉAIRES RELATIVES AU CALCUL DES NEUTRONS DE FISSIONS SPONTANÉES

Noyau	Neutron moyen total émis par fission ($\bar{\nu}$)	Rapport de Branchement de fission spontanée [%]	a [MeV]	b [MeV]
^{241}Am	2.5000	$3.6 \cdot 10^{-10}$	0.9330	3.462
$^{242}\text{Am}^m$	2.5600		0.8990	3.708
^{243}Am	2.6100	$3.7 \cdot 10^{-9}$	0.8643	3.990
^{240}Cm	2.3900*	$3.9 \cdot 10^{-6}$	1.0717	2.698
^{242}Cm	2.5280	$6.2 \cdot 10^{-6}$	0.8874	3.892
^{243}Cm	2.6800*	$5.3 \cdot 10^{-9}$	0.9774	3.190
^{244}Cm	2.6875	$1.37 \cdot 10^{-4}$	0.9025	3.720
^{245}Cm	2.8700*	$6.1 \cdot 10^{-7}$	0.9119	3.624
^{246}Cm	2.9480	0.02615	0.8782	3.886
^{248}Cm	3.1610	8.39	0.8084	4.536
^{250}Cm	3.3100*	74	0.7345	5.436
^{249}Bk	3.4000	$4.7 \cdot 10^{-8}$	0.8913	3.794
^{248}Cf	3.3400*	$2.9 \cdot 10^{-3}$	1.0277	2.932
^{252}Cf	3.7676	3.092	1.025	2.926

Tableau A.1 – Données pour le calcul des neutrons de fissions spontanées. * Données prises de la référence [Sho01]

Annexe B

Définition d'une source dans MURE à l'aide de CHARs

```
/****** Definition de l'échantillon émetteur *****/
// l'échantillon est constitué de dioxyde d'Uranium 232.
Material *Echantillon=new Material();
Echantillon->SetDensity(10.);
Echantillon->AddNucleus(92,232,0,1);
Echantillon->AddNucleus(8,16,0,2);
/****** Definition du terme source *****/
//Création d'un spectre Gamma pour l'instant vide dont la définition
    énergétique va de 0 à 4 MeV en 200 groupes constants.
GammaSpectrum *MonSpectreGamma=new GammaSpectrum(0,4e6,200);
/*Le spectre gamma est rempli en utilisant la composition de l'
    échantillon ayant un volume Volume= 1cm^3 et ayant refroidi pendant
    un temps: Temps=10 ans.*/
double Volume=1e-6;
double Temps=10;
MonSpectreGamma->Fill(GetMaterialAtTime(Echantillon,Temps),Volume));
/*Definition d'une source MCNP ponctuelle au centre de la géométrie
    émettant des gamma selon le spectre d'énergies définies par
    MonSpectreGamma de façon isotropique. Le nombre de particules
    simulées est NbrDeParticules=1 million */
double NbrDeParticules=1e6;
MCNPSource *MaSourceMCNP=new MCNPSource(NbrDeParticules);
MaSourceMCNP->UseThisEnergyDistribution(MonSpectreGamma);
gMURE->SetSource(MaSourceMCNP)
/*Il est possible de définir cette source en tant que source homogène
    distribuée dans un cylindre : */
MaSourceMCNP->AddTubeSource(new Tube(DemiHauteur,Rayon),MonSpectreGamma
    );
```

DEFINITION D'UNE SOURCE DANS MURE À L'AIDE DE CHARS

Annexe C

Proportions de réactions (α, n) sur le noyau i amenant sur le niveau l du noyau produit

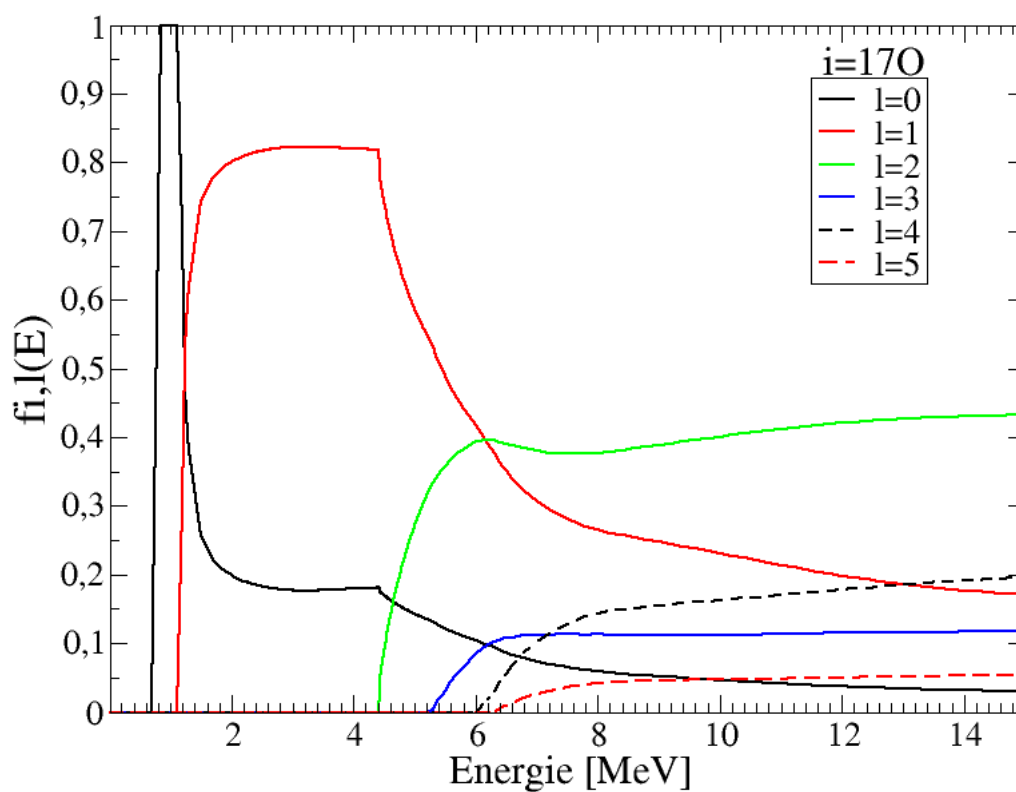


FIGURE C.1 – Pour la réaction $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{20}\text{Ne}^l$

PROPORTIONS DES RÉACTIONS (α, N) SUR LE NOYAU I AMENANT
SUR LE NIVEAU L DU NOYAU PRODUIT

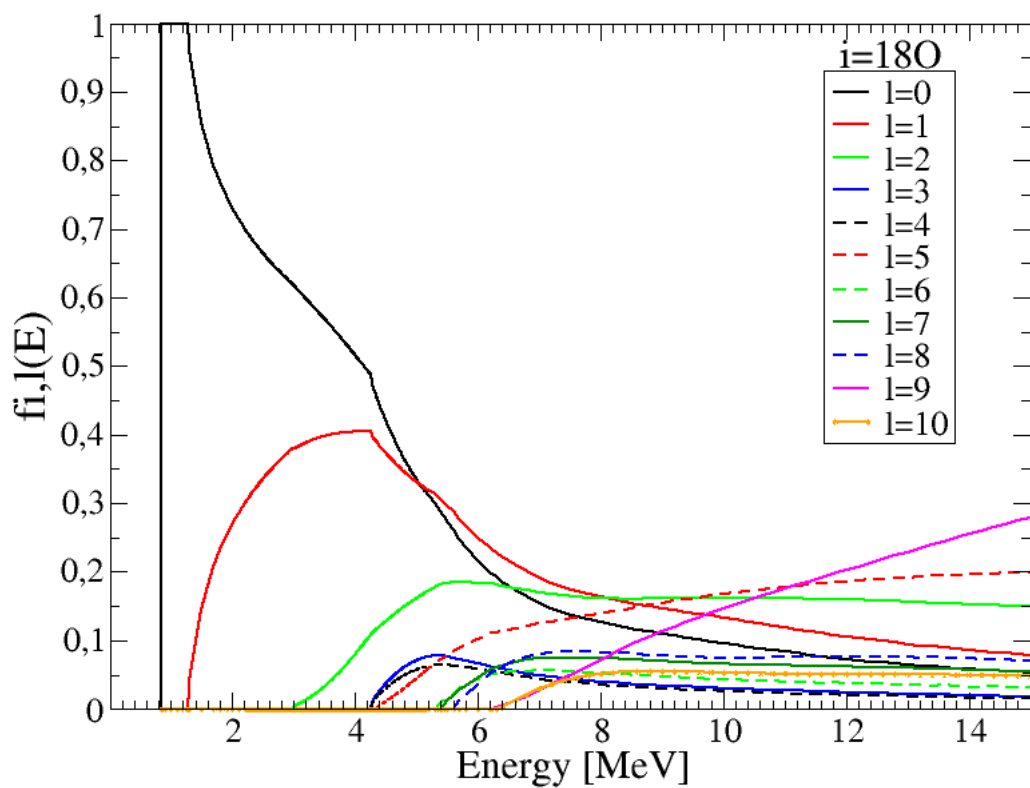


FIGURE C.2 – Pour la réaction $^{18}O(n, \alpha)^{21}Ne^l$

Résumé :

Si le cycle du thorium possède plusieurs avantages par rapport au cycle U/Pu, notamment une meilleure régénération de la matière fissile en spectre thermique et une production moindre d'actinides mineurs, il présente plusieurs limites. L'une d'elles est la présence, dans le combustible thorié irradié, d' ^{232}U . Cet isotope est le précurseur d'un rayonnement γ de 2.6 MeV. Cette thèse a, en partie, pour objectif d'étudier les différents paramètres influençant la synthèse de ce noyau dans divers types de combustibles et de réacteurs. L'autre partie de ce travail consiste à estimer l'impact de cet indésirable sur la radioprotection de l'aval du cycle. Dans ce but, un ensemble d'outils, permettant le calcul des spectres énergétiques des différents rayonnements émis par la matière radioactive, a été spécialement développé. Cet outil, dont l'exactitude a été éprouvée par l'intermédiaire de plusieurs benchmarks, fait partie intégrante de ce travail de thèse.

Mots clés :

Thorium, ^{232}U , Combustible usé, Spectres γ α β^- neutron, Réaction (α, n) , Château de transport, Fabrication du combustible, Débit de dose, Chaleur résiduelle, Rapport de branchement isomérique, Sensibilité, Inventaire adjoint, MCNP, MURE, CHARS

Abstract :

The thorium cycle is a good candidate for replacing the current U/Pu cycle since the fissile nucleus of the cycle, ^{233}U , has neutronic properties favorable to a much better regeneration of fissile material in thermal reactors. Moreover, the production of minor actinides is significantly reduced. However, the use of Thorium is only viable if the spent fuel is reprocessed to recover the fissile ^{233}U which does not exist in nature. This reprocessing will involve a heavy industrial infrastructure, particularly since thorium based spent fuel contains small quantities of ^{232}U which is the mother of the hard gamma emitter (^{208}Tl) of 2.6 MeV. The goal of this thesis is, firstly, to study the parameters related to the synthesis of the ^{232}U in several kind of fuels and reactors. In a second part, the thesis focuses on the impact on radioprotection of the back end of the fuel in case of switching from the current uranium (U/Pu) cycle to the thorium (Th/U) cycle. For this last purpose, CHARS (CHARacterization of Radioactives Sources) was developed during this thesis. This code, validated by several benchmarks, handles the calculation of radiation sources in all aspects of the fuel cycle.

Keywords :

Thorium, ^{232}U , Spent fuel, α spectrum, β^- spectrum, γ spectrum, neutron spectrum, (α, n) reaction, Spent fuel transportation cask, Fuel fabrication plant, Dose rate, Decay heat, Isomeric branching ratio, Sensibility, Adjoint inventory, MCNP, MURE, CHARS